



MÉMOIRE

PRÉSENTÉE À

L'UNIVERSITÉ DU QUÉBEC À CHICOUTIMI

COMME EXIGENCE PARTIELLE

DE LA MAÎTRISE EN INGÉNIERIE

**PAR**

WALID KALLEL

**Étude expérimentale du comportement thermo-chimio-  
mécanique des anodes de carbone en phase de cuisson**

Avril 2018

## Résumé

Les anodes de carbone sont des composantes de toute première importance pour l'industrie de l'aluminium et ce, en raison de leur rôle critique dans la production du métal de première fusion. Toutefois, leur coût de fabrication représente une part considérable du coût total de la production de l'aluminium. Par conséquent, l'amélioration en continue de la qualité de ces anodes, qui constitue une préoccupation majeure pour l'industrie tout en présentant des défis de taille pour les ingénieurs et les scientifiques, s'avère primordiale pour la réduction des coûts et l'augmentation de la productivité, ainsi que pour la consommation du carbone et par conséquence, l'émission des gaz à effet de serre.

La fabrication des anodes de carbone passe par la production d'une pâte de carbone qui est ensuite mise en forme afin d'obtenir une anode crue (verte), et qui est ensuite cuite selon des spécifications particulières. Ladite étape de cuisson est considérée comme étant la phase la plus longue et la plus coûteuse du cycle de fabrication des anodes de carbone.

De plus, une anode de bonne qualité est caractérisée par une faible résistivité électrique, une résistance mécanique élevée à la génération et à la propagation des fissures ainsi que par une faible réactivité. Afin d'obtenir des anodes rencontrant ces exigences, une bonne compréhension de l'évolution de leurs propriétés thermo-chimio-mécaniques durant ladite phase de cuisson demeure cruciale. Cependant, les approches traditionnelles de caractérisation en phase de cuisson ne sont toujours pas bien adaptées

pour représenter le comportement à un niveau de cuisson donné et ce, en raison de l'évolution en continue des réactions chimiques. Dans le cadre de ce projet, une approche innovante est proposée afin d'obtenir une évolution cohérente des propriétés mécaniques (élasticité, fluage, résistance) et ce, par l'identification d'une température critique pour la réalisation des essais. Cette température a été identifiée suite à des essais de thermogravimétrie sur des échantillons cuits à différentes températures, afin de préciser le niveau de réactivité desdits échantillons.

Les essais ont initialement été réalisés à l'aide du système Gleeble<sup>®</sup> et par la suite, à l'aide d'un montage de compression uniaxiale réalisé sur une presse CRIMS<sup>®</sup> et ce, afin d'obtenir une meilleure précision de mesures pour certains niveaux de cuisson et de pouvoir réaliser les essais de fluage/recouvrance. Les échantillons, obtenus d'anodes vertes en provenance d'Aluminerie Alouette Inc. (AAI), ont également été soumis à des essais de dilatométrie libre et ce, afin de caractériser les différents mécanismes de déformation en présence. Finalement, des essais triaxiaux à température ambiante, jumelés à une procédure de correction ont été réalisés afin de caractériser l'évolution de l'enveloppe de rupture en fonction du niveau de cuisson. Ladite procédure de correction, consiste à appliquer le rapport de résistance à chaud versus à l'ambient obtenu des essais uni-axiaux sur les résistances obtenues de l'essai triaxial pour un niveau de cuisson donné.

Certains éléments proposés dans le cadre de ce mémoire revêtent un caractère original, et les résultats obtenus sont parfaitement cohérents avec l'évolution des caractéristiques chimiques du matériau constituant l'anode de carbone.



## **Abstract**

Carbon anodes are important for the aluminum industry due to their critical role in the production of this primary metal. However, their manufacturing cost accounts for a considerable portion of the total cost of aluminum production. Therefore, continuous improvement of anode quality, which is a major concern for the industry, poses significant challenges for engineers and scientists. This is essential to reduce the cost and increase the productivity, also on carbon consumption, consequently, on emission of greenhouse gases. The carbon anodes are made from a carbon paste, which is compacted to obtain green anodes. Later, green anodes are baked under predetermined conditions. Baking phase is considered to be the longest and the most expensive phase of the carbon anode manufacturing process.

In addition, a good quality anode is characterized by low electrical resistivity, high mechanical resistance to the propagation and generation of cracks, and low reactivity. In order to produce anodes with such requirements, a good understanding of the evolution of their thermo-chemo-mechanical properties during the baking phase remains crucial. However, the traditional characterization approaches are still not well adapted to represent the behavior of anodes during baking at intermediate levels because of the continuous evolution of chemical reactions. As part of this project, an innovative approach is proposed to obtain a coherent evolution of the mechanical properties (elasticity, creep, and resistance) by identifying a critical temperature at which the characterization tests should be carried out. This temperature was identified by carrying

out thermogravimetric tests, during which the anode samples were baked up to different temperatures in order to specify the level of chemical reactions that took place in these samples. These tests were carried out using the Gleeble<sup>®</sup> system and subsequently, installing an attachment on a CRIMS<sup>®</sup> press. This was carried out to obtain a better precision of the baking level and to be able to perform creep/recovery tests. The samples, obtained from green anodes of Aluminerie Alouette Inc. (AAI), were also subjected to free dilatometry tests in order to characterize the various deformation mechanisms. Finally, triaxial tests, coupled with a correction procedure, were carried out at room temperature to characterize the evolution of the rupture envelope as a function of the baking level. The correction procedure consists of applying the ratio of thermal resistance obtained at a given temperature from the uniaxial tests to that obtained at ambient temperature from the triaxial test for a given baking level.

The proposed approaches within the context of this thesis present an original character, and the results obtained are perfectly consistent with the evolution of the chemical characteristics of the material constituting the carbon anode.

## **Remerciements**

Ce travail a été réalisé dans le cadre d'un projet de maîtrise à l'Université du Québec à Chicoutimi, au sein de la chaire de recherche UQAC/AAI sur le carbone.

Tout d'abord, je tiens à exprimer mes plus sincères remerciements à mon directeur de recherche, le professeur Daniel Marceau, qui m'a supervisé tout au long de mes travaux. J'ai été ravi de travailler en sa compagnie dans un environnement avec une discipline exemplaire et des réunions de travail régulières qui furent enrichies tant avec un support scientifique que moral.

Je tiens également à témoigner ma gratitude la plus profonde et mes remerciements à ma codirectrice, la professeure Duygu Kocaefe pour ses multiples conseils et orientations, ainsi que pour son support moral et ses idées qui m'ont permis d'améliorer la qualité de mon travail.

Je tiens aussi à remercier le professeur Yasar Kocaefe pour ses qualités humaines d'écoute exemplaire, et qui a toujours su comment me remonter la morale dans les moments les plus difficiles.

Un remerciement spécial s'adresse à Dany Racine, professionnel de recherche au CURAL (Centre universitaire de recherche sur l'aluminium), pour son savoir-faire exemplaire ainsi que pour son support technique de très grande qualité durant mon projet.

Mes plus sincères remerciements s'adressent également à Alexandre Morin, Émelie Brideau, et spécialement, Dave Girard, techniciens au CURAL, pour leur support non seulement technique, mais aussi moral tout au long de mon projet. Je ne peux passer sous silence l'aide scientifique précieuse reçue de mes collègues Pierre-Luc Girard et Abderahmane Benzaoui ainsi que celle du professeur Dipankar Bhattacharyay qui m'ont aidé énormément sur le plan expérimental. De plus, je tiens à remercier mes amis Simon-Olivier Tremblay, Belkacem Amara, Brigitte Morais, Salah Amrani et Fatma Rebaïne, pour leurs idées constructives et leur soutien dans ce projet.

Un grand remerciement est également adressé à Aluminerie Alouette Inc. pour le support technique et financier. Le support financier du Conseil de recherche en sciences naturelles et en génie du Canada (CRSNG), de Développement économique Sept-Îles, de l'Université du Québec à Chicoutimi (UQAC), de la Fondation de l'Université du Québec à Chicoutimi (FUQAC) et du Centre de recherche sur l'aluminium REGAL furent chaleureusement appréciés.

Finalement, je ne peux pas finir sans remercier mes chers parents, mes frères et ma sœur, ainsi que ma fiancée qui m'ont toujours soutenu et m'ont poussé à poursuivre mes études au niveau des cycles supérieurs. Une reconnaissance éblouissante et particulière de leur aide et encouragements dans tous mes parcours aux niveaux académique et personnelle. Vous m'avez enseigné qu'on ne peut rien avoir sans rien donner, même dans le monde du travail, ce qui m'a toujours poussé à m'améliorer dans tout ce que je fais.

## Table des matières

<b>Résumé .....</b>	<b>i</b>
<b>Abstract.....</b>	<b>iv</b>
<b>Remerciements .....</b>	<b>vi</b>
<b>Table des matières .....</b>	<b>viii</b>
<b>Liste des figures .....</b>	<b>xii</b>
<b>Liste des tableaux .....</b>	<b>xxiv</b>
<b>Liste des symboles .....</b>	<b>xxv</b>
<b>Chapitre 1 Introduction.....</b>	<b>1</b>
1.1 Généralités .....	1
1.2 Problématique .....	5
1.3 Objectifs .....	7
1.4 Méthodologie .....	8
1.5 Organisation du mémoire .....	11
<b>Chapitre 2 Recherche bibliographique .....</b>	<b>13</b>
2.1 Introduction .....	13
2.2 L'anode de carbone .....	14
2.2.1 <i>Constituants de l'anode de carbone.....</i>	<i>14</i>
2.2.2 <i>Fabrication des anodes.....</i>	<i>18</i>

2.3	Caractérisation des anodes de carbone en phase de cuisson .....	22
2.3.1	<i>Caractérisation thermochimique</i> .....	22
2.3.2	<i>Caractérisation thermomécanique</i> .....	25
2.4	Sommaire .....	46
<b>Chapitre 3 Montages et méthodes expérimentales .....</b>		<b>47</b>
3.1	Introduction .....	47
3.2	Échantillonnage en usine.....	47
3.3	Préparation des échantillons .....	48
3.3.1	<i>Carottage et usinage</i> .....	48
3.3.2	<i>Mesure de la densité</i> .....	50
3.3.3	<i>Mesure de la résistivité électrique</i> .....	52
3.4	Identification des températures des cuissons partielles .....	53
3.5	Caractérisation thermochimique.....	56
3.5.1	<i>Essai de dilatométrie</i> .....	56
3.5.2	<i>Essai de thermogravimétrie</i> .....	58
3.6	Caractérisation thermomécanique .....	60
3.6.1	<i>Essai de compression uniaxiale</i> .....	61
3.6.2	<i>Essai de compression triaxiale</i> .....	71
3.6.3	<i>Essai de fluage/recouvrance</i> .....	74
3.7	Sommaire .....	76
<b>Chapitre 4 Résultats et discussions .....</b>		<b>77</b>

4.1	Introduction .....	77
4.2	Caractérisation du comportement thermochimique.....	78
4.2.1	<i>Essais de dilatométrie</i> .....	78
4.2.2	<i>Essai de thermogravimétrie</i> .....	82
4.3	Caractérisation du comportement thermomécanique .....	86
4.3.1	<i>Compression uniaxiale</i> .....	86
4.3.2	<i>Compression triaxiale</i> .....	96
4.3.3	<i>Définition de l'enveloppe de rupture</i> .....	103
4.4	Caractérisation du comportement en fluage/recouvrance .....	109
4.4.1	<i>Résultats en fluage</i> .....	110
4.4.2	<i>Recouvrance</i> .....	117
4.4.3	<i>Non-linéarité du comportement visqueux</i> .....	128
4.5	Sommaire .....	131
	<b>Chapitre 5 Conclusion et recommandations.....</b>	<b>133</b>
5.1	Rétrospective et conclusions .....	133
5.2	Recommandations .....	135
	<b>Bibliographie .....</b>	<b>138</b>
	<b>Annexes .....</b>	<b>146</b>
	A - Essais de compression uniaxiale à TA sur des échantillons d'anode de carbone crus et cuits à différentes températures .....	146

B - Essais de compression uniaxiale à 180°C sur des échantillons d'anode de carbone crus .....	152
C - Essais de compression uniaxiale à 230°C sur des échantillons d'anode de carbone crus .....	153
D - Essais de compression uniaxiale à 250°C sur des échantillons d'anode de carbone cuits à 300°C .....	154
E - Essais de compression uniaxiale à 250°C sur des échantillons d'anode de carbone cuits à 400°C .....	155
F – Paramètres de l'enveloppe de rupture identifiés à partir des tests de compression triaxiale .....	157



## Liste des figures

Figure 1.1 : Schéma d'une cuve d'électrolyse [3].	2
Figure 1.2 : Croquis de quelques agrégats enrobés de liant [4].	3
Figure 1.3: Étapes de production de l'anode de carbone [7].	4
Figure 1.4 : Four de cuisson industriel des anodes de carbone [8].	5
Figure 1.5 : Impact de la qualité d'anode sur l'émission du gaz à effet de serre (GHG) [10].	6
Figure 1.6 : Anode sévèrement attaquée par le CO <sub>2</sub> [10].	6
Figure 1.7 : Méthodologie.	10
Figure 2.1 : Vibrocompacteur industriel [29].	19
Figure 2.2 : Dilatomètre utilisé pour différentes pâtes en carbone [34].	23
Figure 2.3: Essai de dilatation thermique sur des échantillons d'anode de carbone pendant la cuisson en fonction de la température avec différents taux de chauffe [35].	24
Figure 2.4: Perte de masse en fonction de la température sur des échantillons extraits de cinq différentes anodes [37].	25
Figure 2.5 : Essais de traction (à gauche) et de flexion (à droite) sur des échantillons d'anode de carbone [38].	26
Figure 2.6: Variation de la résistance en compression de la pâte monolithique mesurée à basse et haute températures en fonction de la température de cuisson [30].	29

Figure 2.7: Variation des paramètres élastiques de la pâte monolithique déterminés à TA en fonction de la température de cuisson [30]. .....	29
Figure 2.8 : Équipement utilisé par Orangi pour les essais à TA et à haute température sur des échantillons de la pâte monolithique [40]. .....	30
Figure 2.9 : Variation de la résistance en compression de la pâte monolithique déterminée à haute température en fonction de la température de cuisson dans des conteneurs d'alumine et d'inconel [40]. .....	31
Figure 2.10: Variation du module d'Young de la pâte monolithique déterminé à haute température en fonction de la température de cuisson dans des conteneurs d'alumine et d'inconel [40]. .....	31
Figure 2.11: Cellule de compression triaxiale [41] (modifiée). .....	32
Figure 2.12 : Courbes contrainte vs déformation axiales obtenues pour la pâte monolithique précuites à différentes températures avec confinements [30]. .....	33
Figure 2.13 : Essais de compression triaxiale sur des échantillons de béton G25 [43].	34
Figure 2.14 : Courbe typique de fluage lors de l'application d'une contrainte constante et en observant la déformation totale en fonction du temps [46]. .....	36
Figure 2.15 : Courbe typique du mécanisme de fluage avec recouvrance [40]. .....	37
Figure 2.16 : Montage pour les essais de fluage sur des échantillons de pâte monolithique cuits à différentes températures et testés à TA [39]. .....	39
Figure 2.17 : Fluage axial sur des échantillons de la pâte monolithique cuits à 560°C et testés à TA [39]. .....	40

Figure 2.18 : Fluage axial sur des échantillons de la pâte monolithique cuits à 750°C et testés à TA [39].	41
Figure 2.19 : Fluage axial sur des échantillons de la pâte monolithique cuits à 1000°C et testés à TA [39].	41
Figure 2.20 : Fluage radial sur des échantillons de la pâte monolithique cuits à 750°C et testés à TA [39].	42
Figure 2.21 : Fluage radial sur des échantillons de la pâte monolithique cuits à 1000°C et testés à TA [39].	42
Figure 2.22 : Taux de déformation en fluage spécifique à TA sur des échantillons de la pâte monolithique cuits à 200°C, 250°C et 1000°C [40].	44
Figure 2.23 : Taux de déformation en fluage spécifique pour des échantillons de la pâte monolithique testés à 300°C et cuits à 350°C ,445°C et 1000°C [40].	44
Figure 2.24 : Essais de recouvrance à 300°C sur des échantillons de la pâte monolithique cuits à a) 350°C, 445°C et 1000°C et b) 1000°C [40].	46
Figure 3.1 : Plan d’emplacement des carottes dans une anode industrielle.	48
Figure 3.2 : Carotteuse du laboratoire de la Chaire UQAC/AAI (CURAL).	49
Figure 3.3 : Détermination de la longueur moyenne [48].	51
Figure 3.4 : Détermination du diamètre moyen [48].	52
Figure 3.5 : Four de cuisson Pyradia au laboratoire carbone de la Chaire UQAC/AAI (CURAL).	54
Figure 3.6 : Montage de dilatométrie.	57
Figure 3.7 : Système d’analyse thermogravimétrique (TGA).	60

Figure 3.8 : Presse Gleeble® 3800. ....	62
Figure 3.9 : Espace de travail de la presse CRIMS®. ....	65
Figure 3.10 : Presse CRIMS modifiée. ....	66
Figure 3.11: Montage pour mesure du déplacement axial. ....	67
Figure 3.12 : À gauche : Réponse générée lors du mouvement vertical pour la mesure de la déformation radiale d'un essai de compression uniaxiale. À droite : Montage de calibration pour la déformation radiale. ....	68
Figure 3.13 : Déplacement radial vs déplacement vertical. ....	69
Figure 3.14 : Essai de compression uniaxiale à TA sur un échantillon d'anode de carbone totalement cuit ( $\nu = 0.13$ ). ....	69
Figure 3.15 : Essai de compression uniaxiale à haute température sur un échantillon d'anode de carbone totalement cuit ( $\nu = 0.12$ ). ....	70
Figure 3.16 : Montage pour les essais de compression triaxiale. ....	73
Figure 3.17 : Unité hydraulique. ....	74
Figure 4.1 : Déformation totale mesurée lors d'un essai de dilatométrie avec un taux de chauffe de 11°C/h sur un échantillon d'anode de carbone cru. ....	80
Figure 4.2 : Déformation thermique mesurée lors d'un essai de dilatométrie avec un taux de chauffe de 11°C/h sur un échantillon d'anode de carbone cuit. ....	81
Figure 4.3 : Déformation chimique calculée lors d'un essai de dilatométrie avec un taux de chauffe de 11°C/h sur un échantillon d'anode de carbone cru. ....	82
Figure 4.4 : Essai de thermogravimétrie sur un échantillon d'anode de carbone partiellement cuit jusqu'à 400°C. ....	84

Figure 4.5 : Concentrations cumulatives des volatiles dégagés d'un échantillon d'anode en carbone pendant la cuisson [37]. .....	84
Figure 4.6 : Variation de <i>Suc</i> déterminée à TA en fonction de la densité des échantillons d'anode de carbone crus.....	87
Figure 4.7 : Courbes contrainte vs déformation axiale tracées à partir des essais de compression uniaxiale à TA sur des échantillons d'anode de carbone totalement cuits. ....	88
Figure 4.8 : Courbes déformation radiale vs déformation axiale tracées à partir des essais de compression uniaxiale à TA sur des échantillons d'anode de carbone totalement cuits. ....	88
Figure 4.9 : Variation du module d'Young, déterminé à TA, de l'anode de carbone en fonction de la température de cuisson. ....	89
Figure 4.10 : Variation du coefficient de Poisson, déterminé à TA, de l'anode de carbone en fonction de la température de cuisson.....	90
Figure 4.11 : Variation de la résistance ultime à la compression uniaxiale, mesurée à haute température, de l'anode de carbone en fonction de la température de cuisson. ....	92
Figure 4.12 : Variation du module d'Young, déterminé à haute température, de l'anode de carbone en fonction de la température de cuisson.....	92
Figure 4.13: Variation du coefficient de Poisson, déterminé à haute température, de l'anode de carbone en fonction de la température de cuisson. ....	94

Figure 4.14 : Courbes contrainte vs déformation axiale tracées à partir des essais de compression uniaxiale réalisés à 120°C sur des échantillons d'anode de carbone crus. ....	95
Figure 4.15 : Courbes déformation radiale vs déformation axiale tracées à partir des essais de compression uniaxiale réalisés à 120°C sur des échantillons d'anode de carbone crus. ....	95
Figure 4.16 : Échantillon d'anode de carbone fissuré et testé dans sa phase molle (entre 120°C et 400°C) lors d'un essai de compression uniaxiale à chaud. ....	96
Figure 4.17 : Essais de compression triaxiale à TA sur des échantillons d'anode de carbone crus et cuits à différentes températures soumis à une pression de confinement de 30 MPa. ....	98
Figure 4.18 : Courbes moyennes des essais de compression triaxiale à TA sur des échantillons d'anode de carbone soumis à différentes pressions de confinement. ....	99
Figure 4.19 : Évolution de la résistance ultime à la compression triaxiale $\sigma_{1TA}$ en fonction de la contrainte de confinement $\sigma_3$ . ....	99
Figure 4.20 : Évolution du facteur $\beta$ en fonction de la température de cuisson. ....	102
Figure 4.21 : Évolution de la compression triaxiale à chaud en fonction de la température de cuisson suivant le niveau de confinement (0.2 <i>Suc</i> , 0.4 <i>Suc</i> et 0.6 <i>Suc</i> ). ....	103
Figure 4.22 : Graphique typique du critère de Mohr-Coulomb [60]. ....	104
Figure 4.23 : Compression triaxiale à chaud des échantillons d'anode de carbone soumis à différents niveaux de confinement suivant différentes températures de cuisson allant de l'état cru à l'état totalement cuit. ....	105

Figure 4.24 : Évolution du cohésion $\tau_0$ en fonction de la température de cuisson. ....	108
Figure 4.25 : Évolution de la compression et de la traction uniaxiale à chaud issues de l'enveloppe de rupture en fonction de la température de cuisson. ....	109
Figure 4.26 : Fluage dans les directions axiale et radiale des échantillons d'anode de carbone crus testés à 25°C. ....	111
Figure 4.27 : Fluage dans les directions axiale et radiale des échantillons d'anode de carbone crus testés à 120°C. ....	112
Figure 4.28 : Fluage dans les directions axiale et radiale des échantillons d'anode de carbone crus testés à 180°C. ....	113
Figure 4.29 : Fluage dans les directions axiale et radiale des échantillons d'anode de carbone crus testés à 230°C. ....	114
Figure 4.30 : Fluage dans les directions axiale et radiale des échantillons d'anode de carbone cuits à 300°C testés à 250°C. ....	114
Figure 4.31 : Fluage dans les directions axiale et radiale des échantillons d'anode de carbone cuits à 400°C testés à 250°C. ....	116
Figure 4.32 : Fluage axial des échantillons d'anode de carbone cuits à 500°C testés à 250°C. ....	117
Figure 4.33 : Courbe contrainte-temps conventionnelle (1) issue d'un essai de fluage/recouvrance (2) [40]. ....	118
Figure 4.34 : Fluage/recouvrance axial des échantillons d'anode de carbone crus testés à 25°C. ....	119

Figure 4.35 : Fluage/recouvrance radial des échantillons d'anode de carbone crus testés à 25°C.....	119
Figure 4.36 : Fluage/recouvrance axial des échantillons d'anode de carbone crus testés à 120°C.....	120
Figure 4.37 : Fluage/recouvrance radial des échantillons d'anode de carbone crus testés à 120°C.....	121
Figure 4.38 : Fluage/recouvrance axial des échantillons d'anode de carbone crus testés à 180°C.....	121
Figure 4.39 : Fluage/recouvrance radial des échantillons d'anode de carbone crus testés à 180°C.....	122
Figure 4.40 : Fluage/recouvrance axial des échantillons d'anode de carbone crus testés à 230°C.....	122
Figure 4.41 : Fluage/recouvrance radial des échantillons d'anode de carbone crus testés à 230°C.....	123
Figure 4.42 : Fluage/recouvrance axial des échantillons d'anode de carbone cuits à 300°C testés à 250°C. ....	123
Figure 4.43 : Fluage/recouvrance radial des échantillons d'anode de carbone cuits à 300°C testés à 250°C. ....	124
Figure 4.44 : Fluage/recouvrance axial des échantillons d'anode de carbone cuits à 400°C testés à 250°C. ....	124
Figure 4.45 : Fluage/recouvrance radial des échantillons d'anode de carbone cuits à 400°C testés à 250°C. ....	125



Figure 4.46 : Fluage/recouvrance axial des échantillons d'anode de carbone cuits à 500°C testés à 250°C. ....	125
Figure 4.47 : Évolution fluage/recouvrance axiale en fonction de la température à 40% <i>Suc</i> .....	127
Figure 4.48 : Pourcentage de la déformation récupérée lors de la recouvrance en fonction de la température de cuisson. ....	127
Figure 4.49 : Déformation spécifique en fluage pour des échantillons d'anode de carbone crus testés à TA sous différentes contraintes. ....	129
Figure 4.50 : Déformation spécifique en fluage pour des échantillons d'anode de carbone crus testés à 120°C sous différentes contraintes. ....	129
Figure 4.51 : Déformation spécifique en fluage pour des échantillons d'anode de carbone crus testés à 180°C sous différentes contraintes. ....	130
Figure 4.52 : Déformation spécifique en fluage pour des échantillons d'anode de carbone crus testés à 230°C sous différentes contraintes. ....	130
Figure 4.53 : Déformation spécifique en fluage pour des échantillons d'anode de carbone cuits à 300°C et testés à 250°C sous différentes contraintes.....	131
Figure A.1 : Courbes contrainte vs déformation axiale tracées à partir des essais de compression uniaxiale à TA sur des échantillons d'anode de carbone crus. ....	146
Figure A.2 : Courbes déformation radiale vs déformation axiale tracées à partir des essais de compression uniaxiale à TA sur des échantillons d'anode de carbone crus .....	147

Figure A.3 : Courbes contrainte vs déformation axiale tracées à partir des essais de compression uniaxiale à TA sur des échantillons d'anode de carbone cuits à 300°C.	147
Figure A.4 : Courbes déformation radiale vs déformation axiale tracées à partir des essais de compression uniaxiale à TA sur des échantillons d'anode de carbone cuits à 300°C.	148
Figure A.5 : Courbes contrainte vs déformation axiale tracées à partir des essais de compression uniaxiale à TA sur des échantillons d'anode de carbone cuits à 400°C.	148
Figure A.6 : Courbes déformation radiale vs déformation axiale tracées à partir des essais de compression uniaxiale à TA sur des échantillons d'anode de carbone cuits à 400°C.	149
Figure A.7 : Courbes contrainte vs déformation axiale tracées à partir des essais de compression uniaxiale à TA sur des échantillons d'anode de carbone cuits à 500°C.	149
Figure A.8 : Courbes déformation radiale vs déformation axiale tracées à partir des essais de compression uniaxiale à TA sur des échantillons d'anode de carbone cuits à 500°C.	150
Figure A.9 : Courbes contrainte vs déformation axiale tracées à partir des essais de compression uniaxiale à TA sur des échantillons d'anode de carbone cuits à 600°C.	150

Figure A.10 : Courbes déformation radiale vs déformation axiale tracées à partir des essais de compression uniaxiale à TA sur des échantillons d'anode de carbone cuits à 600°C.....	151
Figure A.11 : Courbes contrainte vs déformation axiale tracées à partir des essais de compression uniaxiale à 180°C sur des échantillons d'anode de carbone crus. ..	152
Figure A.12 : Courbes déformation radiale vs déformation axiale tracées à partir des essais de compression uniaxiale à 180°C sur des échantillons d'anode de carbone crus. ....	153
Figure A.13 : Courbes contrainte vs déformation axiale tracées à partir des essais de compression uniaxiale à 230°C sur des échantillons d'anode de carbone crus. ..	153
Figure A.14 : Courbes déformation radiale vs déformation axiale tracées à partir des essais de compression uniaxiale à 230°C sur des échantillons d'anode de carbone crus. ....	154
Figure A.15 : Courbes contrainte vs déformation axiale tracées à partir des essais de compression uniaxiale à 250°C sur des échantillons d'anode de carbone cuits à 300°C.....	154
Figure A.16 : Courbes déformation radiale vs déformation axiale tracées à partir des essais de compression uniaxiale à 250°C sur des échantillons d'anode de carbone cuits à 300°C. ....	155
Figure A.17 : Courbes contrainte vs déformation axiale tracées à partir des essais de compression uniaxiale à 250°C sur des échantillons d'anode de carbone cuits jusqu'à 400°C. ....	155

Figure A.18 : Courbes déformation radiale vs axiale déformation radiale tracées à partir  
des essais de compression uniaxiale à 250°C sur des échantillons d'anode de  
carbone cuits à 400°C. ....156

## Liste des tableaux

Tableau 3.1 : Tableau présentant les températures de cuisson des échantillons testés à chaud et à TA.....	55
Tableau 3.2 : Tableau des essais de fluage/recouvrance. ....	75
Tableau 4.1 : Tableau des essais réalisés à différentes températures suivant le niveau de cuisson. ....	85

## Liste des symboles

Définition de la variable	Symbole	Unité
Angle de frottement interne	$\varphi$	degrés
Coefficient d'expansion thermique	$\alpha$	$[\text{°C}^{-1}]$
Cohésion	$\tau_0$	[MPa]
Contrainte	$\sigma$	[MPa]
Contrainte axiale	$\sigma_a$	[MPa]
Contrainte principale axiale	$\sigma_1$	[MPa]
Contrainte principale de confinement	$\sigma_3$	[MPa]
Contrainte principale de confinement à température ambiante	$\sigma_3^{TA}$	[MPa]
Contrainte principale de confinement à chaud	$\sigma_3^C$	[MPa]
Coefficient de Poisson	$\nu$	–
Déformation	$\varepsilon$	[mm/mm]
Déformation axiale	$\varepsilon_a$	[mm/mm]
Déformation d'origine chimique	$\varepsilon_{ch}$	[mm/mm]
Déformation d'origine thermique	$\varepsilon_{th}$	[mm/mm]
Déformation élastique	$\varepsilon_e$	[mm/mm]
Déformation viscoélastique	$\varepsilon_{ve}$	[mm/mm]
Déformation viscoplastique	$\varepsilon_{vp}$	[mm/mm]

Déformation récupérée	$\varepsilon_{rec}$	[mm/mm]
Déformation spécifique en fluage	$\varepsilon_{sf}$	[mm/mm]
Déformation totale	$\varepsilon_{tot}$	[mm/mm]
Densité apparente	$D$	[kg/m <sup>3</sup> ]
Diamètre	$d$	[mm]
Longueur	$l$	[mm]
Masse	$m$	[g]
Module d'Young	$E$	[GPa]
Résistance ultime à la compression triaxiale à température ambiante	$\sigma_1^{TA}$	[MPa]
Résistance ultime à la compression triaxiale à chaud	$\sigma_1^C$	[MPa]
Résistance de cisaillement	$\tau$	[MPa]
Résistance ultime à la compression uniaxiale	$S_{uc}$	[MPa]
Résistance ultime à la compression uniaxiale à température ambiante	$S_{uc}^{TA}$	[MPa]
Résistance ultime à la compression uniaxiale à chaud	$S_{uc}^C$	[MPa]
Résistance ultime à la traction uniaxiale	$S_{ut}$	[MPa]
Température	$T$	[°C]

## Chapitre 1

### Introduction

#### 1.1 Généralités

L'aluminium est un métal qui ne se trouve pas sous forme libre dans la nature, mais plutôt sous forme oxydée  $\text{Al}_2\text{O}_3$  (alumine). En effet, l'aluminium est extrait à l'intérieur d'une cuve d'électrolyse suivant le procédé connu sous le nom de «Hall-Héroult», et qui a été découvert simultanément en 1886 par l'américain Charles Martin Hall, et le français Paul Louis Toussaint Héroult. Cette découverte a mené à une révolution dans le domaine de la production d'aluminium au niveau industriel. La production mondiale d'aluminium atteint les 6000 tonnes en 1900 [1], pour atteindre 31.8 millions de tonnes en 2005 [2]. L'aluminium est un matériau qui possède des propriétés impressionnantes telles que sa résistance mécanique, sa facilité d'usinage, sa légèreté, ses conductivités électrique et thermique élevées, ainsi que sa résistance à la corrosion et son aptitude au recyclage. Ses propriétés lui ont permis de devenir un matériau très compétitif pour de multiples applications comme la construction, l'emballage, l'alimentation, l'électricité, l'aéronautique et l'automobile [2].

Le procédé Hall-Héroult consiste à dissoudre l'alumine ( $\text{Al}_2\text{O}_3$ ) dans un bain électrolytique (figure 1.1), constitué de cryolite fondue ( $\text{Na}_3\text{AlF}_6$ ) à une température avoisinant les  $960^\circ\text{C}$ . Sous l'effet du solvant (bain électrolytique), les molécules d'alumine sont ionisées puis transportées par un courant électrique faisant ainsi réagir le



carbone des anodes avec l'oxygène, pour former des oxydes de carbone et libérant du même coup l'aluminium. La réaction globale s'écrit sous la forme :

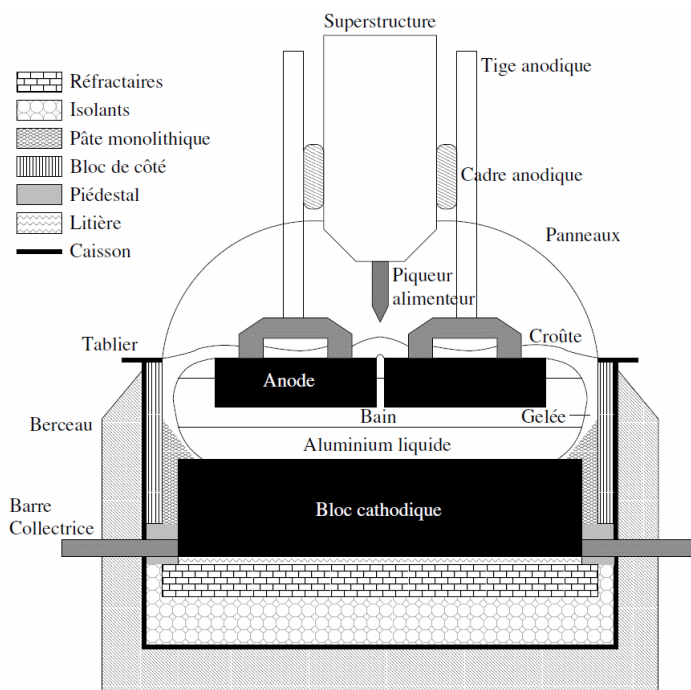
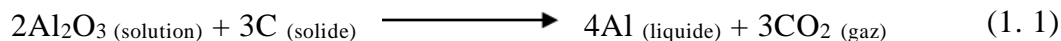


Figure 1.1 : Schéma d'une cuve d'électrolyse [3].

Les anodes, qui constituent la source de carbone consommable nécessaire à l'électrolyse, servent également au transport du courant électrique dans la cuve électrolytique par l'entremise des connecteurs anodiques. Les anodes de carbone sont fabriquées à partir d'agréats de coke de pétrole, qui représentent la principale partie de ses constituants (65%), du brai (ou pitch : utilisé comme agent liant : 15%) et des résidus d'anode recyclés (20% : mégots résultants de la partie restante des anodes après leur utilisation dans le procédé, rejets d'anodes crues ou cuites) [1]. Cette structure est présentée sur la figure 1.2.

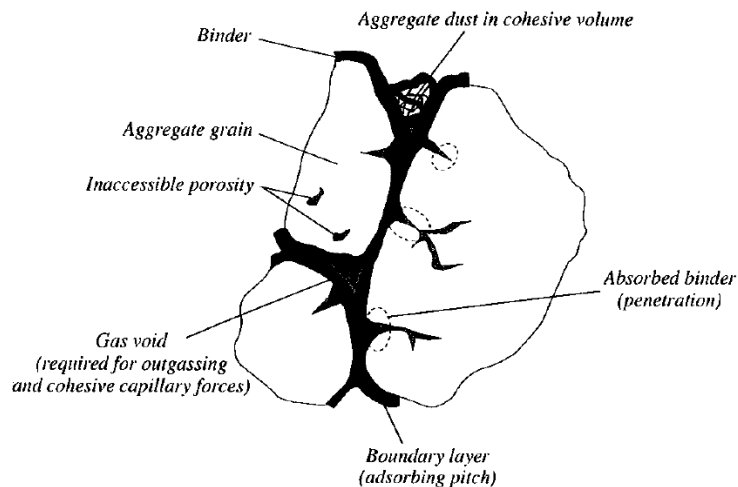


Figure 1.2 : Croquis de quelques agrégats enrobés de liant [4].

La fabrication des anodes (figure 1.3) débute à la tour à pâte avec la préparation des agrégats secs. Les agrégats sont ensuite chauffés à environ 170°C et mélangés dans un mélangeur-malaxeur avec le brai, pour obtenir une pâte prête à la mise en forme qui sera réalisée par vibro-compaction. Pour se faire, la pâte de carbone est versée dans une moule contenant une géométrie spécifique de l'anode et qui est par la suite soumise à une vibration en milieu confiné, jusqu'à ce que l'anode de carbone ait atteint une densité d'environ 1600 kg/m<sup>3</sup> [4]. À ce stade, les anodes sont dites vertes (cruées) et sont acheminées par la suite au four de cuisson. Lors de cette étape, les anodes sont empilées dans des alvéoles et cuites selon une cédule de cuisson bien définie avec des températures avoisinant les 1200°C. Durant la cuisson, les anodes acquièrent les propriétés chimiques et physiques nécessaires à leur utilisation dans la cuve d'électrolyse. La qualité finale de l'anode de carbone dépend en grande partie du procédé de cuisson [5]. Ce procédé est considéré comme la plus importante et la plus coûteuse

des étapes de toute la chaîne de production des anodes de carbone. S'étalant sur une période de 2 à 3 semaines, la cuisson des anodes industrielles est réalisée dans de grands fours spécialisés. Les anodes sont tout d'abord déposées dans les chambres du four et entourées par le coke de garnissage. Ce produit, aussi appelé packing coke, est constitué de particules de coke de taille appropriée servant à combler l'espace entre les blocs d'anodes et les murs de la chambre dans le four de cuisson (figure 1.4). Le coke de garnissage sert de support mécanique afin de limiter la déformation de la structure de l'anode [6], surtout à un certain intervalle de température durant lequel l'anode devient très molle. Il sert également à prévenir la diffusion de l'air, et par conséquent, l'oxydation des anodes.

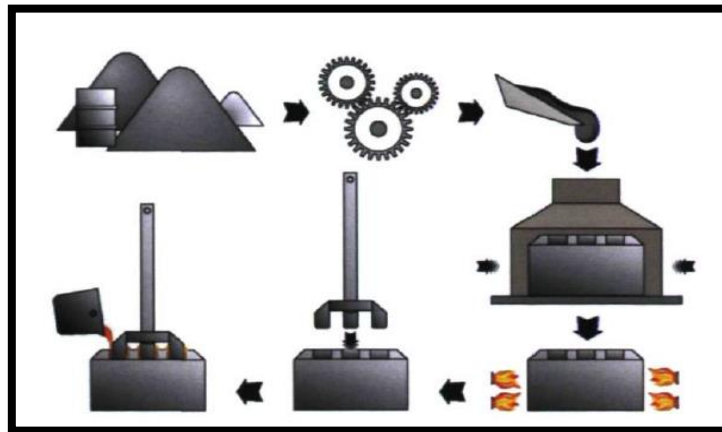


Figure 1.3: Étapes de production de l'anode de carbone [7].

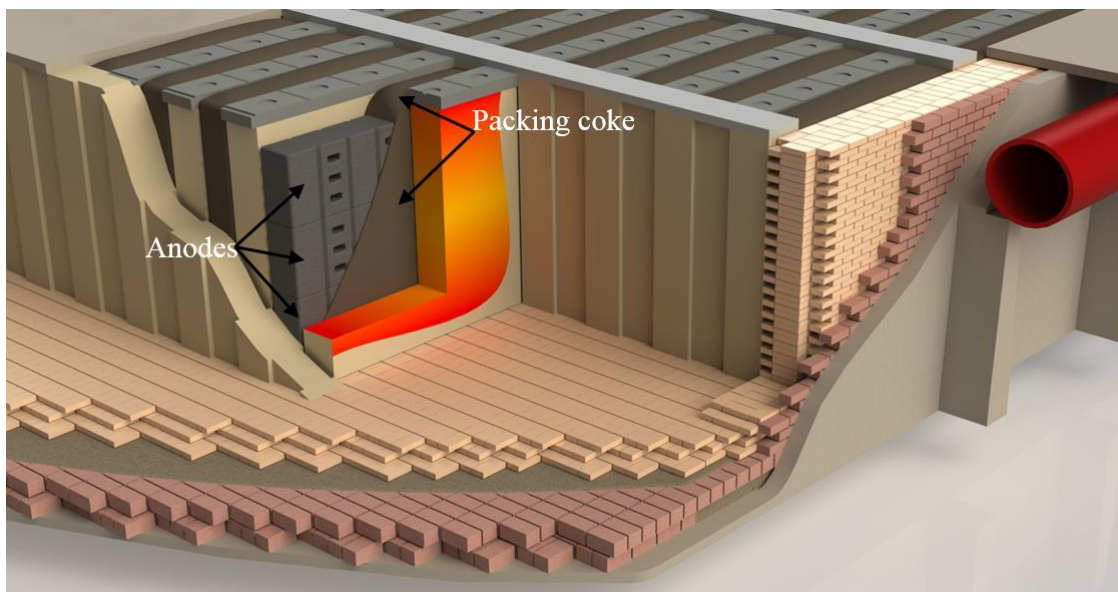


Figure 1.4 : Four de cuisson industriel des anodes de carbone [8].

Les anodes sont ensuite acheminées au scellement [4] après leur refroidissement. Afin d'assurer l'obtention d'anodes de qualité, il est donc essentiel de caractériser l'évolution de leurs propriétés physiques et mécaniques durant la phase de cuisson.

## 1.2 Problématique

La consommation des anodes de carbone, ainsi que la consommation énergétique associée au procédé d'électrolyse, impliquent des coûts importants pour l'industrie de l'aluminium primaire. En effet, assurer une production d'aluminium de haute qualité représente un objectif primordial pour une telle industrie et ce pour un meilleur coût, tout en respectant au mieux les réglementations en matière de préservation et d'impact sur l'environnement (figure 1.5). Dans ce contexte, l'utilisation d'anodes homogènes, disposants d'une bonne résistance mécanique, d'une faible résistance électrique, d'une

bonne résistance aux chocs thermiques, ainsi que d'une faible réactivité à l'air et au  $\text{CO}_2$  [4, 9] (figure 1.6) s'avère cruciale.

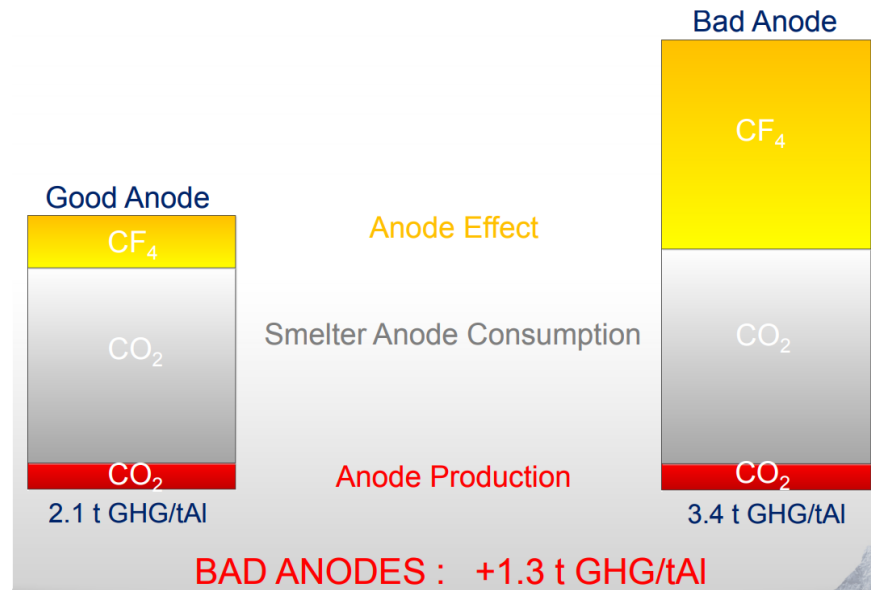


Figure 1.5 : Impact de la qualité d'anode sur l'émission du gaz à effet de serre (GHG) [10].



Figure 1.6 : Anode sévèrement attaquée par le  $\text{CO}_2$  [10].

L'obtention de telles anodes exige une attention particulière quant à la qualité et au choix des matières premières, à la fabrication de l'anode crue ainsi qu'à l'étape de cuisson. L'ensemble de ses étapes aura une influence marquée sur la qualité finale de l'anode obtenue. Plus spécifiquement, lors de la cuisson, d'importants changements dans la structure de l'anode de carbone mènent à une évolution de ses propriétés. Du point de vue mécanique, divers phénomènes tels que le confinement des anodes avec les anodes

environnantes et le packing coke (coke de garnissage), le changement de phase du brai à l'état liquide, la libération des matières volatiles ainsi que les effets de l'expansion thermochimique pourront influencer le comportement déformationnel de l'anode voir même, générer des contraintes excessives et créer des fissures [11]. De plus, les pressions générées peuvent créer des déformations par fluage, surtout à des températures de cuisson basses où l'anode de carbone est encore molle et donc, aisément déformable.

Ainsi, plusieurs phénomènes se produisant dans l'anode de carbone pendant la phase de cuisson demeurent difficiles à décrire et ce, malgré les recherches réalisées à ce jour. Afin de permettre une étude qualitative et quantitative des mécanismes de déformations dans l'anode durant sa phase de cuisson, une étude expérimentale permettant de cerner la nature de ces mécanismes et de les quantifier s'avère nécessaire.

### **1.3 Objectifs**

L'objectif principal de ce projet est de caractériser l'évolution du comportement thermo-chimio-mécanique de l'anode de carbone sur la plage de température et au taux de chauffe inhérente à l'étape de cuisson dans les fours industriels. Plus spécifiquement, on entend caractériser en fonction du niveau de cuisson :

- l'expansion thermochimique de l'anode de carbone ;
- les propriétés élastiques ;
- la résistance mécanique en compression ;
- le comportement visqueux (fluage/recouvrance).

À moyen terme, les fruits de ce travail seront utilisés dans le cadre d'un autre projet visant le développement d'un modèle numérique qui permettra l'étude du comportement thermo-chimio-mécanique des anodes de carbone dans les fours de cuisson industriels.

À plus long terme, les résultats obtenus permettront de mieux comprendre l'impact des conditions de cuisson sur la qualité mécanique des anodes de carbone et ainsi d'améliorer le procédé de cuisson, ce qui aura pour effet :

- d'assurer une meilleure uniformité des anodes produites ;
- de minimiser la quantité d'anodes rejetées ;
- de prolonger la durée de vie des anodes dans les cuves d'électrolyse ;
- de réduire les coûts de production.

#### **1.4 Méthodologie**

L'atteinte des objectifs de ce travail passe par la mise en place d'une méthodologie en quatre volets (figure 1.7).

Tout d'abord, le premier volet s'attaque à l'identification des mécanismes de déformation présents dans l'anode lors de sa cuisson. Selon la littérature existante dans le domaine, ces derniers sont d'origine thermique, chimique, élastique et visqueuse. Des essais exploratoires ont permis de fixer les idées sur les mécanismes en présence.

Le deuxième volet vise à réaliser une campagne d'échantillonnage en usine dans le but d'obtenir des échantillons crus et cuits de grade industrielle. Cette étape est suivie d'une procédure de carottage et d'usinage des échantillons d'anodes afin d'assurer leur

conformité aux exigences des essais à réaliser incluant des mesures de densité, ainsi que des mesures de résistivité électrique et ce, dans le but d'avoir une idée sur le niveau des fissures présentes dans l'anode.

Le troisième volet s'attaque à la cuisson partielle des échantillons afin d'atteindre les niveaux de cuisson désirés allant de la température ambiante (TA) jusqu'à 1200°C environ et ce, afin de permettre la réalisation de nos différents essais thermomécaniques sur toute la plage de température vue par l'anode de carbone lors de sa cuisson.

Finalement, le quatrième volet s'attaque à la caractérisation proprement dite. Dans un premier temps, des essais de dilatométrie libre seront réalisés afin de dissocier les différents mécanismes de déformation en présence. En parallèle, des analyses thermogravimétriques permettant d'identifier les différentes réactions chimiques et transformations en présence. Quant aux essais mécaniques proprement dits, on s'attarde ici à la caractérisation des propriétés élastiques, à la résistance en compression et au comportement visqueux (fluage/recouvrance) en fonction du niveau de cuisson. Pour se faire, des essais de compression uniaxiale à haute température et triaxiaux à TA seront réalisés. Une attention particulière sera portée à la mesure d'une déformation transversale (effet de Poisson) représentative lors de la réalisation des essais de compression uniaxiale.



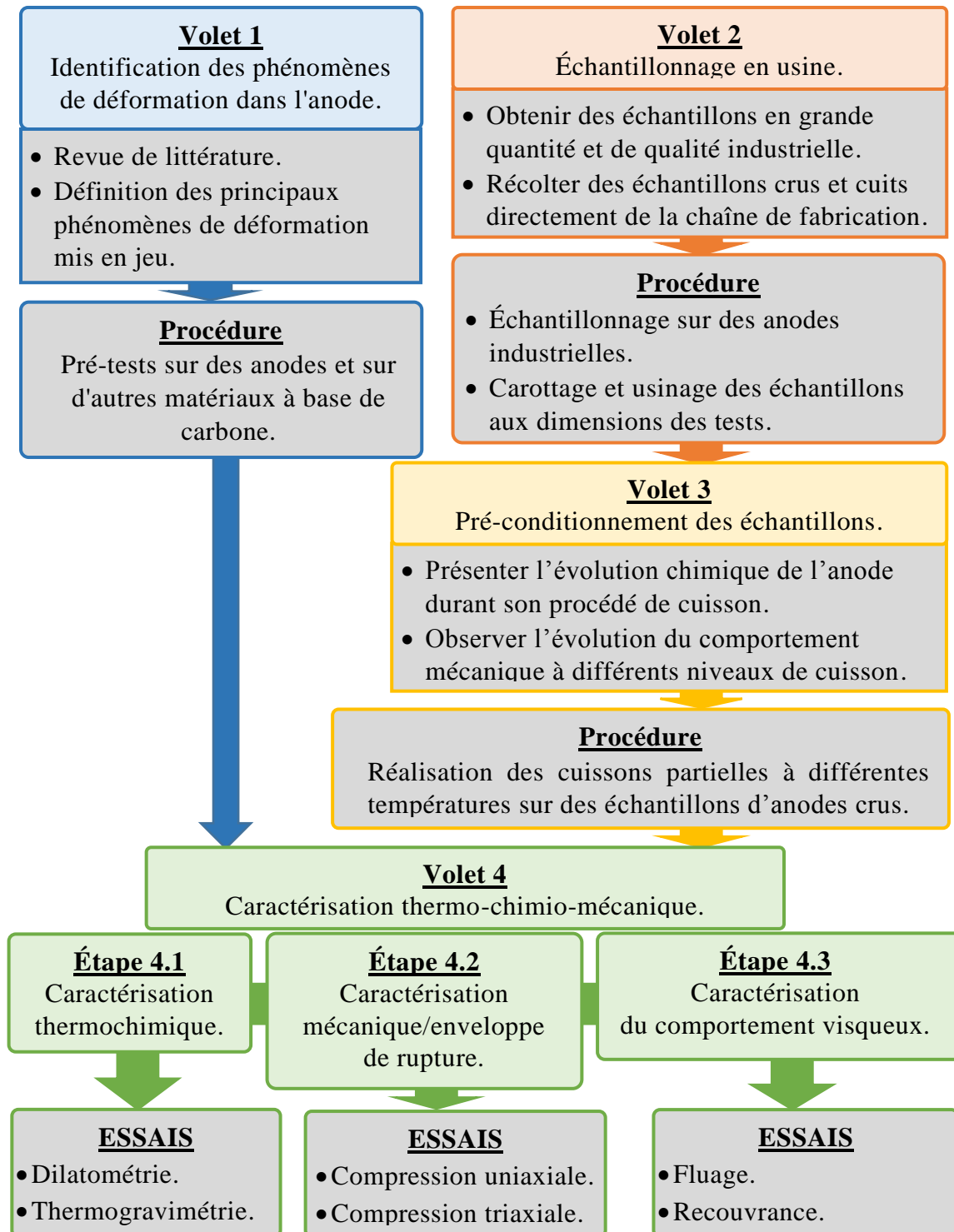


Figure 1.7 : Méthodologie.

## **1.5 Organisation du mémoire**

Le présent mémoire est subdivisé en cinq grands chapitres. Le premier chapitre est consacré à une introduction générale du sujet traité en initiant le lecteur à la production de l'aluminium primaire ainsi qu'au rôle de l'anode de carbone dans le procédé et ce, en passant par la problématique générale du projet, les principaux objectifs ainsi que la méthodologie adoptée pour l'atteinte de ces derniers.

Le deuxième chapitre présente les résultats d'une recherche bibliographique sur les travaux antérieurs en lien direct et indirect avec le sujet du mémoire. Ce chapitre attaque deux thèmes principaux, dont le premier concerne la structure de l'anode de carbone ainsi que sa fabrication, alors que le deuxième concerne une revue des principales techniques de caractérisation des matériaux à base de carbone pendant la phase de cuisson.

Le troisième chapitre présente les montages ainsi que les méthodes développées pour la réalisation des différents essais expérimentaux, allant de l'échantillonnage en usine à la réalisation des essais en passant par la préparation desdits échantillons. Une attention particulière est portée au conditionnement des différents échantillons à différents niveaux de cuisson, à l'identification des températures d'essais ainsi qu'à la description des montages et méthodes expérimentales employées afin de permettre la caractérisation thermochimique, thermomécanique et visqueuse.

Le quatrième chapitre traite des résultats obtenus incluant des discussions pertinentes en regard du comportement du matériau lors de sa cuisson. On s'attarde

particulièrement à la caractérisation du comportement thermochimique de l'anode de carbone afin de décrire son évolution chimique durant sa cuisson et ce, afin de fixer les températures des différents essais mécaniques à réaliser. S'en suit l'étape de caractérisation thermomécanique, comportant des essais de compression uniaxiale à TA et à chaud qui sont suivis par des essais de compression triaxiale. Finalement, les résultats de la caractérisation du comportement visqueux sont présentés et discutés suite aux essais de fluage/recouvrance, permettant ainsi de décrire l'évolution des mécanismes de déformation visqueuse de l'anode durant sa cuisson.

Le cinquième et dernier chapitre du mémoire présente une rétrospective des travaux réalisés ainsi que des recommandations pertinentes pour les travaux futurs.

Certaines informations sont également présentées en annexe afin de permettre une meilleure compréhension du mémoire.

## Chapitre 2

### Recherche bibliographique

#### 2.1 Introduction

L'anode de carbone est une composante essentielle pour la production de l'aluminium primaire par électrolyse. Étant donné le coût important de production des anodes, qui peut parfois atteindre jusqu'à 20 – 25% du coût total de production de l'aluminium [12], il est indispensable de comprendre les différents phénomènes qui interagissent lors du processus de fabrication de l'anode, et qui ont un impact direct sur sa qualité finale. Parmi les étapes critiques de sa fabrication, on ne peut passer sous silence la phase de cuisson durant laquelle divers phénomènes thermiques, chimiques et mécaniques interagissent entre eux. Dans ce contexte, il importe de procéder à une revue exhaustive de la bibliographie et ce, afin d'assurer une excellente compréhension des différents phénomènes prenant place lors de ladite cuisson mais également, de s'enquérir des travaux réalisés à ce jour dans le domaine de la caractérisation des matériaux thermo-réactifs tels que l'anode de carbone.

Les matériaux à base de carbone présents dans les cuves d'électrolyse, que ce soit les anodes, les cathodes ou la pâte monolithique ont un comportement thermomécanique complexe, ce qui explique la multitude des travaux réalisés dans ce domaine. Dans ce chapitre, une synthèse des travaux publiés antérieurement est présentée, afin d'être en mesure d'avoir une meilleure compréhension du comportement thermo-chimio-mécanique de l'anode de carbone durant son processus de cuisson.

## **2.2 L'anode de carbone**

Les anodes de carbone sont constituées du coke de pétrole, de mégots et de rejets d'anodes recyclés, ainsi que du brai de goudron de houille. Ces matériaux peuvent avoir des propriétés significativement différentes en fonction de leur provenance. Des travaux ont été réalisés sur l'optimisation des matières premières et du procédé de fabrication des anodes [13]. La grande variabilité des propriétés des matières premières est l'un des nombreux critères qui influencent la qualité finale des anodes. Une anode qui est jugée de bonne qualité est une anode qui a une bonne homogénéité, une faible porosité, en plus de posséder une résistance mécanique élevée, une faible résistance électrique, une bonne résistance aux chocs thermiques ainsi qu'une faible réactivité à l'air et au CO<sub>2</sub> [6]. En plus de présenter un défi majeur pour les chercheurs au cours des dernières années, l'amélioration continue des propriétés des anodes de carbone aura favorisé davantage le bon fonctionnement du procédé d'électrolyse, afin d'améliorer la production de l'aluminium de première fusion. L'efficacité de la réduction de l'alumine dans les cuves d'électrolyse est influencée par la qualité des anodes de carbone. La qualité des anodes est généralement évaluée avant leur utilisation dans les cellules électrolytiques, et donc après le procédé de cuisson.

### **2.2.1 Constituants de l'anode de carbone**

#### ***Coke de pétrole***

Le coke de pétrole calciné est le principal matériau carboné composant les anodes de carbone et ce, avec une fraction massique d'environ 65% de la masse totale de la pâte

d'anode. Le coke est utilisé sous forme de particules avec des fractions de tailles différentes sous forme d'agrégats, et de poussière de tailles fines pour produire une matrice avec le brai liant. Le coke de pétrole est un mélange d'hydrocarbures lourds, qui est obtenu à partir de la décomposition thermique et de la polymérisation des résidus de la distillation du pétrole brut [14].

Le coke de pétrole est un produit issu des raffineries de pétrole qui sont pourvues d'unités de cokéfaction [15]. Le coke de pétrole renferme un pourcentage élevé de carbone (85%), ainsi que de plus petites quantités d'hydrogène et d'hydrocarbures légers qui se dégagent sous forme de matières volatiles au cours d'un traitement thermique à haute température [16]. Avant son utilisation pour la fabrication des anodes de carbone, on procède à une calcination du coke et ce, dans le but d'assurer une meilleure stabilité de sa structure cristalline [16, 17]. Le coke est ainsi calciné dans des fours dédiés puis acheminés vers une unité de refroidissement [6]. Cette étape cruciale permet de réduire la quantité des matières volatiles du coke et d'augmenter sa conductivité électrique.

Les propriétés du coke affectent les propriétés de l'anode. En effet, plusieurs chercheurs ont étudié l'impact des caractéristiques du coke sur la qualité de l'anode obtenue. La qualité et l'origine du coke ont un impact direct sur la qualité finale de l'anode telle que la résistivité électrique, l'expansion thermique, la densité ainsi que la porosité [18]. La granulométrie des particules de coke a un impact direct sur le niveau de porosité dans l'anode, et par le fait même, sur l'apparition et la propagation des fissures. Des travaux ont été réalisés pour optimiser la taille des particules de coke dans

l'anode, car ladite taille a une influence sur l'accessibilité du brai pour atteindre certains pores [19], d'où l'apparition d'une porosité qui est observable surtout après la cuisson. La distribution de la taille des agrégats dans l'anode formés de coke et de mégots, ainsi que la répartition granulométrique des particules fines de coke affectent la densité crue et cuite des anodes, la résistance à la compression [4], la distribution de la taille des pores [20], la résistivité électrique et même la réactivité des anodes [18].

### ***Brai***

En 1681, la récupération du brai à partir du goudron de houille a été découverte pour la première fois par le chimiste anglais Henry Serle et l'allemand Johann Bacher [21]. En effet, le brai de houille pourra être produit par distillation du goudron de houille, un sous-produit du procédé de fabrication du coke métallurgique [6]. Il s'agit d'une substance noire qui est sous forme solide à TA, avant de se liquéfier à des températures supérieures à son point de ramollissement [22].

Le rôle du brai est de lier les différents agrégats constituant l'anode ; en couvrant la surface des particules de coke, en plus en pénétrant dans les pores et en remplissant l'espace vide entre les particules, et ce afin de lier tous les agrégats. Les facteurs qui influencent les propriétés chimiques et physiques du brai de houille sont le processus de carbonisation du charbon (pyrolyse du charbon) et du goudron brut, ainsi que les caractéristiques et la composition du goudron [23]. Lors de la cuisson de l'anode de carbone, le brai se décompose en formant de fortes liaisons entre les grains de coke par

carbonisation pour augmenter les propriétés physiques, ainsi que la résistance mécanique et la conductivité électrique [18].

### ***Mégots***

La durée de vie d'une anode de carbone dans une cuve d'électrolyse est de l'ordre d'environ 3 semaines [24]. L'anode de carbone se consume lors de l'électrolyse. En fin de vie, les résidus d'anodes (mégots) sont refroidis, nettoyés des contaminants du bain, écrasés puis recyclés. Les mégots d'anode recyclés sont utilisés comme agrégats dans la pâte d'anode, et ses propriétés physiques, chimiques et mécaniques affectent la qualité finale de l'anode cuite obtenue [25, 26]. Les mégots d'anode sont classés en deux catégories : durs et mous. Les mégots durs sont semblables aux anodes originales alors que les mégots mous sont plus attaqués pendant l'électrolyse. Les mégots mous sont plus poreux et ont une résistance mécanique, une conductivité thermique ainsi qu'une densité plus faible, mais une perméabilité et une réactivité plus élevées que les mégots durs [18]. Le pourcentage des mégots récupéré au terme de l'électrolyse peut varier et atteindre jusqu'à 30% de la recette [11].

### ***Rejets d'anode***

Les rejets d'anode proviennent des parties qui sont jugées non conformes à la qualité exigée pour la production de l'aluminium dans les cuves d'électrolyse. Ces rejets peuvent être crus ou cuits. Les rejets crus sont issus des anodes à l'état cru qui présentent des imperfections, alors que les rejets cuits sont issus des anodes à l'état cuit qui sont



jugées non conformes, suite à certains défauts produits par la cuisson tels la fissuration [11].

### **2.2.2 Fabrication des anodes**

#### ***Malaxage***

Le malaxage est une étape primordiale dans le processus de fabrication des anodes de carbone. Suivant une granulométrie bien définie, ce procédé consiste à malaxer le brai liquide avec les différents agrégats. La distribution des tailles de particule est répartie selon 30% pour les grosses particules, 20% pour les particules moyennes, 20% pour les particules fines, et finalement 30% pour les particules de faibles tailles [27].

Le malaxage est réalisé suivant des paramètres bien déterminés définissant le temps, la vitesse ainsi que la température du malaxage. La qualité des anodes de carbone dépend fortement de ces différents paramètres liés au malaxage, qui peuvent être corrélés avec certaines propriétés de l'anode, telle que la densité et la porosité [28].

#### ***Mise en forme de l'anode de carbone***

Une fois que la pâte d'anode est prête suite au processus du malaxage, s'en suit une étape de mise en forme par vibrocompaction (ou presse ; cependant, la vibrocompaction est plus avantageuse pour les anodes de grandes tailles). Un vibrocompacteur (figure 2.1) est constitué principalement d'un moule à pâte d'anode ayant la géométrie du bloc d'anode à former, d'un couvercle comprenant un système de

charge qui réalise le compactage de la pâte d'anode, ainsi qu'une table vibrante reposant sur des amortisseurs. La vibration est assurée par un moteur entraînant la rotation d'un balourd, situé au-dessous de la table vibrante avec une certaine fréquence d'excitation. La vibrocompaction de la pâte d'anode est réalisée à une température situant généralement entre 140°C et 170°C avec un temps, une vitesse et une force de vibration bien définie [4]. Par la suite, le bloc d'anode formé est extrait du moule puis refroidi jusqu'à la TA.



Figure 2.1 : Vibrocompacteur industriel [29].

### ***Cuisson de l'anode de carbone***

Le processus de cuisson est l'étape la plus importante et la plus coûteuse de tout le cycle de production des anodes de carbone. Durant la cuisson, l'anode acquiert des

caractéristiques nécessaires à l'électrolyse d'aluminium, et permettant d'avoir une certaine résistance à la fissuration et aux chocs thermiques [11]. L'anode crue est cuite jusqu'à 1100°C-1200°C pour obtenir les propriétés désirées telles que la résistance mécanique, la densité, la résistivité électrique et la longueur cristalline [18]. De plus, la performance de l'opération de cuisson a un impact direct sur la qualité finale de l'anode cuite obtenue et ce, dépendamment des différents paramètres mis en jeu, à savoir le taux de chauffe, les gradients de température à l'intérieur de la chambre à cuisson, ainsi que le temps de maintien pour l'homogénéisation de la température de l'anode. Lors de la cuisson, pour une montée en température jusqu'à environ 150°C, une pression sera générée à l'intérieur de l'anode consécutive du changement de phase du brai à l'état liquide, ce qui amène un relâchement des contraintes résiduelles produites lors du malaxage et du refroidissement des blocs d'anodes après la vibrocompaction. Dépassant une certaine limite, ces contraintes peuvent générer des fissures. S'en suit une forte libération de volatiles, surtout sur un intervalle de température se situant entre 250°C et 600°C. Cette libération engendre une pression qui pourra à son tour générer des fissures, si les matières volatiles ne sont pas dégagées assez rapidement. Afin de limiter la possibilité de formation des fissures par excès de pression, il est indispensable d'utiliser un taux de chauffe convenable pendant la cuisson [11].

La phase de cuisson est donc un processus complexe durant lequel l'anode de carbone subit diverses transformations physiques et chimiques lui permettant d'atteindre les propriétés satisfaisantes à son utilisation dans le procédé d'électrolyse. Au cours de la cuisson des anodes, le brai adopte une structure visqueuse qui durcit suite à diverses

réactions et transformations chimiques, ce qui influence considérablement la qualité du produit final [5]. Les travaux précédents qui furent réalisés sur un matériau à base de carbone ont indiqué que, puisque les particules de coke dans l'anode ont été déjà calcinées, l'évolution des propriétés d'anode pendant la phase de cuisson est causée principalement par les changements de la phase liante (brai) [30, 31].

Le processus de cuisson consiste à chauffer lentement les anodes dans un four sur un cycle de deux à trois semaines, de la TA jusqu'à environ 1150°C et ce, suivi d'une période de refroidissement [6]. Le brai est considéré comme solide à la TA jusqu'à environ 120°C, qui est sa température de ramollissement. À cette température, la viscosité du brai commence à diminuer considérablement. La viscosité à 140°C se situe entre 3000 et 12 000 cP, par la suite, elle diminue pour se situer entre 1000 et 2000 cP à 160°C, et encore plus à 180°C pour atteindre des valeurs situant entre 200 et 500 cP [4]. À ce stade, la fluidité du brai lui permet de s'insérer dans les pores à travers les particules. La pâte d'anode a alors une texture pâteuse avec un comportement viscoplastique la rendant ainsi vulnérable à la déformation.

Par la suite, la viscosité continue à baisser jusqu'à ce que le brai devienne complètement liquide à environ 200°C. Les matières volatiles commencent à se dégager à environ 250°C, en débutant par les condensables les plus lourds jusqu'à environ 500°C, suivis par le dégagement des volatiles les plus légers (le méthane et l'hydrogène), ainsi que la cokéfaction du brai qui continue jusqu'à la fin de cuisson [32]. Entre 250 et 500°C, l'anode perd une partie importante de sa masse et de son volume due aux dégagements

des volatiles [6]. Par la suite, soit entre 400°C et 500°C, le brai (la phase liante) entre dans un processus de cokéfaction menant ainsi à la solidification de l'anode via un phénomène de polymérisation et de polycondensation du liant pour former un semi-coke solide. Pour des températures supérieures à 500°C, le brai poursuit sa carbonisation, ce qui transforme la microstructure de l'anode vers sa forme finale [32]. À ce stade, l'anode est totalement cuite et est prête pour le procédé d'électrolyse

### **2.3 Caractérisation des anodes de carbone en phase de cuisson**

À ce jour, peu de travaux sur l'évolution thermo-chimio-mécanique ont été réalisés sur l'anode de carbone. Il est bien connu qu'il s'agit d'un matériau poreux avec une structure hétérogène à l'échelle macroscopique dont les agrégats sont fixés ensemble par un liant qui est le brai. La présente section décrit quelques travaux sur la caractérisation thermochimique et thermomécanique réalisés sur l'anode ainsi que d'autres matériaux à bas de carbone.

#### **2.3.1 Caractérisation thermochimique**

Pendant le processus de cuisson, l'anode subit un changement de porosité et de densité, ainsi qu'un ensemble de phénomènes déformationnels. Le dilatomètre est un dispositif qui permet de mesurer une déformation conséquente d'un ensemble de dilatation et/ou de contraction en fonction de la température. Dans le cas des anodes de carbone, une atmosphère inerte doit être maintenue et ce, afin d'éviter l'oxydation de l'échantillon à tester. Des essais de dilatométrie ont déjà été réalisés par Faaness et *al.* [33] sur des matériaux à base de carbone, et plus précisément sur des mesures de

dilatation/contraction de la pâte monolithique lors de sa cuisson à l'aide du montage montré à la figure 2.2.

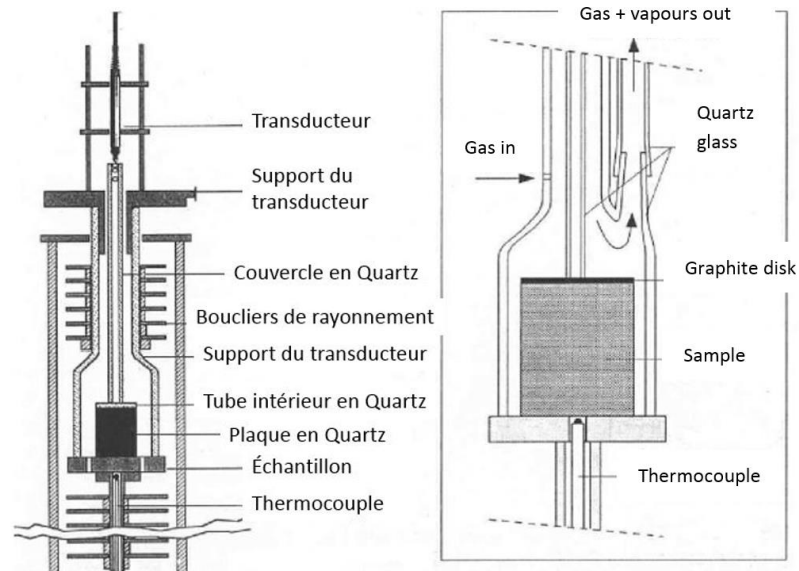


Figure 2.2 : Dilatomètre utilisé pour différentes pâtes en carbone [34].

Une caractérisation par dilatométrie a été réalisée en 2004 par D'Amours [30] sur des échantillons de pâte monolithique. Ce travail a permis de distinguer les différents mécanismes de déformations, issues de l'ensemble de dilatation et/ou de contraction durant la cuisson. Ces mécanismes se décomposent sous les formes : thermique réversible et chimique irréversible. Plus récemment, des essais de dilatométrie ont été réalisés en 2006 par Chmelar [35] pour caractériser la dilatation thermique des anodes de carbone crues durant la cuisson, suivant différents taux de chauffe (figure 2.3) et ce, pour étudier l'impact du taux de chauffe sur la dilatation thermique des anodes de carbone.

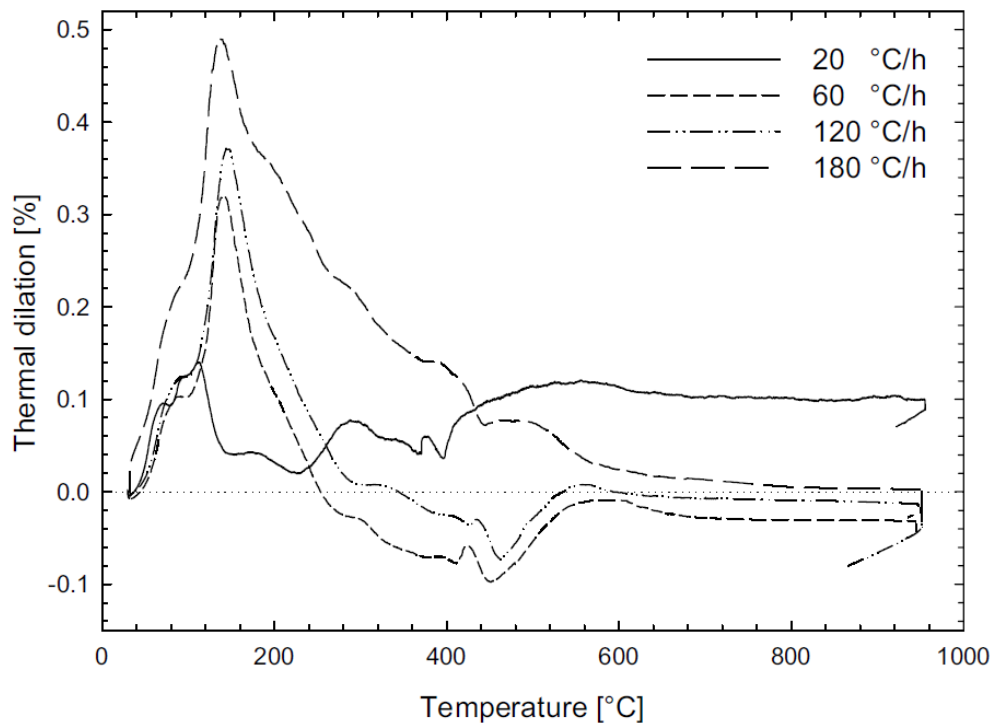


Figure 2.3: Essai de dilatation thermique sur des échantillons d'anode de carbone pendant la cuisson en fonction de la température avec différents taux de chauffe [35].

Le coefficient d'expansion thermique est un paramètre qui définit le changement du volume de l'échantillon suite à une variation de la température. Une faible valeur du coefficient d'expansion thermique est souhaitable, ce qui permet de réduire l'impact de la montée en température sur l'intensité des contraintes développées [6]. La qualité, la nature et la granulométrie des matières premières constituant l'anode de carbone ont une grande influence sur le coefficient d'expansion thermique [36].

Pendant son processus de cuisson, il est bien connu que l'anode de carbone perd entre 4.5 et 6% [4] de sa masse. Le dégagement de ces matières peut être caractérisé durant la cuisson à travers des essais de thermogravimétrie (TGA) qui donne directement la perte de masse (la quantité des volatiles dégagés). La figure 2.4 montre certains

résultats tirés des travaux de Kocaefe et *al.* [37] permettant de suivre le dégagement des volatiles durant le processus de cuisson des anodes de carbone par TGA.

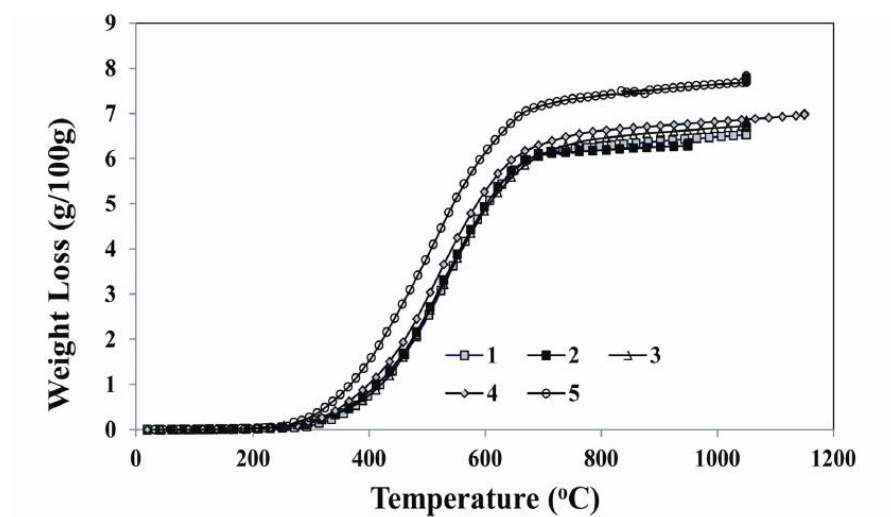


Figure 2.4: Perte de masse en fonction de la température sur des échantillons extraits de cinq différentes anodes [37].

Les résultats obtenus montrent clairement que le grand pourcentage de la perte de masse des anodes de carbone, issue du dégagement des matières volatiles, se situe dans des intervalles de température entre 250°C et 800°C environ, avec une légère portion qui persiste jusqu'à la fin de la cuisson.

### 2.3.2 Caractérisation thermomécanique

Au fil des années, plusieurs travaux ont été réalisés pour caractériser le comportement thermomécanique des matériaux à base de carbone. Cependant, l'évolution de ces propriétés exige encore aujourd'hui une meilleure compréhension des phénomènes en cause. Dans ce qui suit, une revue sur la caractérisation par compression uniaxiale, compression triaxiale ainsi que par fluage/recouvrance est réalisée.



### *Caractérisation par compression uniaxiale*

Les travaux les plus souvent rencontrés sur la caractérisation thermomécanique des matériaux thermo-réactifs se basent sur des approches expérimentales impliquant des essais réalisés à TA sur des échantillons préalablement cuits à une température donnée. Andersen et Zhang [38] ont mesuré la résistance ultime à la traction, à la compression et à la flexion et ils ont identifié le module d'Young  $E$  à TA, ainsi qu'à des températures entre 200°C et 400°C sur des échantillons d'anode totalement cuits de grandes dimensions. La figure 2.5 montre les équipements expérimentaux utilisés pour la réalisation des tests.

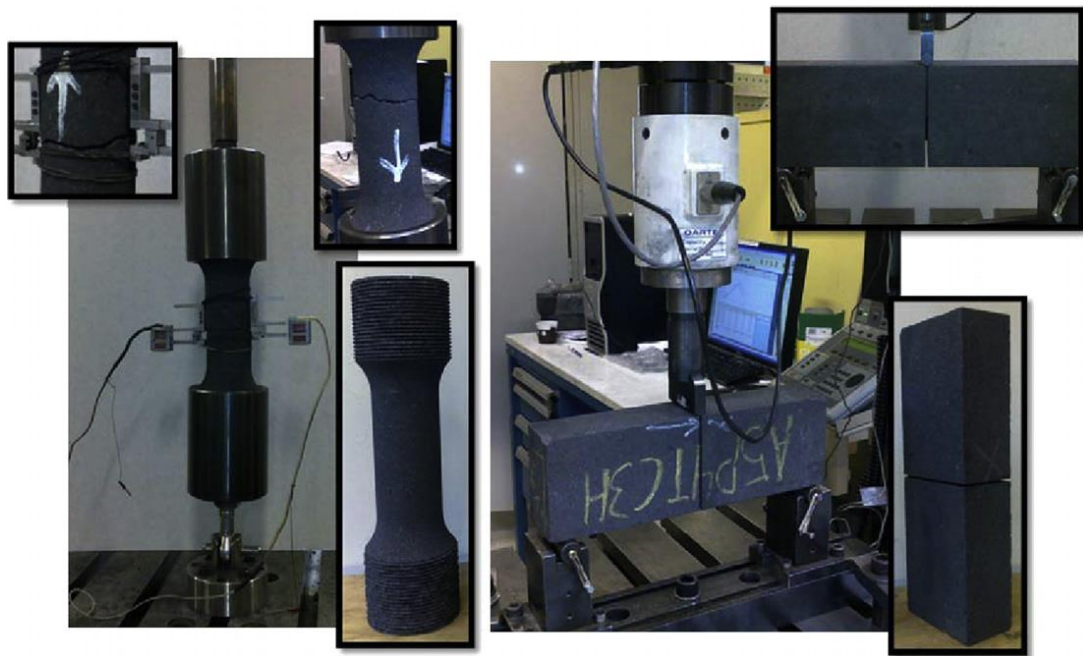


Figure 2.5 : Essais de traction (à gauche) et de flexion (à droite) sur des échantillons d'anode de carbone [38].

Leurs résultats ont montré une grande dépendance de ces propriétés à la température. D'Amours [30] a mesuré le module d'Young  $E$ , le coefficient de Poisson  $\nu$

(la déformation a été mesurée à l'aide de deux LVDT) et la résistance ultime à la compression  $S_{uc}$  de la pâte monolithique et ce, pour des échantillons partiellement cuits allant de l'état cru jusqu'à l'état cuit à environ 1000°C, et qui ont été testés à TA. Le but de ses essais fut d'étudier l'évolution des propriétés mécaniques en fonction du niveau de cuisson. Les résultats obtenus ont montré que le coefficient de Poisson  $\nu$  diminue entre 180°C et 1000°C, alors que  $E$  et  $S_{uc}$  augmentent rapidement de 250°C jusqu'à 435°C, après quoi ils se stabilisent lentement grâce à la rigidité qui prend place dans l'échantillon lors de sa cuisson. En effet, le module d'Young est initialement très faible et donc la pâte est peu rigide. Par la suite, il commence à augmenter à 250°C environ pour atteindre son maximum autour de 435°C. Enfin, le module recommence à diminuer jusqu'à la fin de la cuisson (figure 2.6). Ceci est possiblement dû à l'endommagement des échantillons créé lors de la cuisson. En ce qui concerne  $\nu$  (figure 2.7), les résultats ont montré une valeur élevée au début de la cuisson (matériau incompressible), et commence à diminuer en cours de ce processus jusqu'à la fin en raison du comportement du matériau qui devient compressible, suite au dégagement des volatiles dont le matériau devient poreux [30]. Les mêmes conclusions ont été obtenues récemment par St-Arnaud et *al.* [39] qui ont mesuré le module d'Young, le coefficient de Poisson ainsi que la résistance ultime à la compression de la pâte monolithique sur des échantillons de grande dimension.

Afin de mieux comprendre l'impact de la température sur le comportement mécanique des matériaux à base de carbone, certains auteurs ont réalisé des essais à haute température. Il faut noter que les essais à haute température ont toujours présenté

un problème majeur en termes de techniques de mesure, surtout à des températures critiques pour lesquelles le matériau change de phase et devient mou. D'Amours [30] a mesuré la résistance ultime à la compression de la pâte monolithique pour des échantillons partiellement cuits qui ont été testés à des températures légèrement au-dessous de la température de cuisson (figure 2.6). Les résultats obtenus ont montré une tendance complètement différente de celle obtenue à TA. Pour les essais réalisés sur des échantillons partiellement cuits à 175°C, 250°C et 400°C, les résultats ont montré que le matériau se comporte comme un fluide visqueux incompressible avec de faibles valeurs de  $E$  et  $S_{uc}$ . À environ 250°C, la pâte monolithique commence à avoir une certaine résistance qui demeure cependant relativement faible comparée à celle obtenue à TA (figure 2.6). Pour les échantillons partiellement cuits à 400°C et plus, les mesures de  $S_{uc}$  sont similaires à celles obtenues à la TA. D'autres travaux ont été réalisés par Orangi [40] sur la pâte monolithique à l'aide d'un équipement capable d'identifier la résistance ultime (figure 2.9) ainsi que le module d'Young (déformation mesurée à l'aide d'un jauge de déformation) à haute température (figure 2.10). Les essais de compression uniaxiale ont été réalisés à 160°C et 200°C sur des échantillons partiellement cuits à 200°C et 250°C, respectivement. Les températures des essais étaient inférieures à celles des niveaux de cuisson, et ceci afin d'éviter des réactions chimiques supplémentaires au cours des essais. Cependant, les raisons pour lesquelles les températures des essais ont été choisies n'ont pas été expliquées. D'autre part, les résultats d'Orangi [40] ont montré que les mesures de  $E$  n'ont pas pu être obtenues pour des niveaux de cuisson inférieurs à 200°C et ce, en raison de la texture très molle de la pâte monolithique. De plus, Les

résultats ont montré que le module d'Young ainsi que la résistance ultime à chaud de la pâte monolithique augmentent avec l'augmentation de la température de cuisson (figure 2.10).

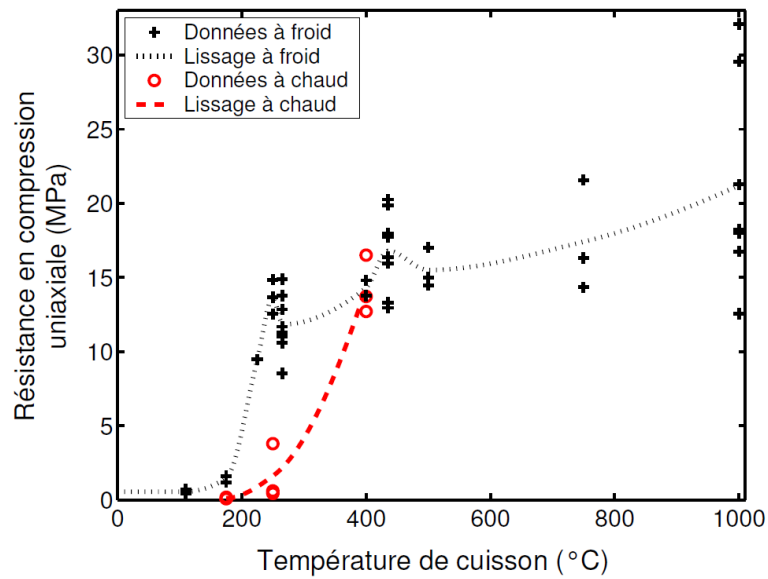


Figure 2.6: Variation de la résistance en compression de la pâte monolithique mesurée à basse et haute températures en fonction de la température de cuisson [30].

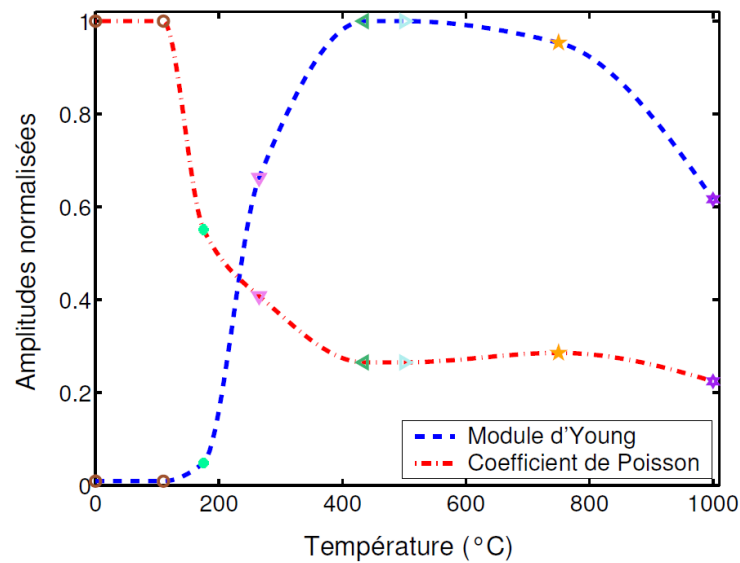


Figure 2.7: Variation des paramètres élastiques de la pâte monolithique déterminés à TA en fonction de la température de cuisson [30].

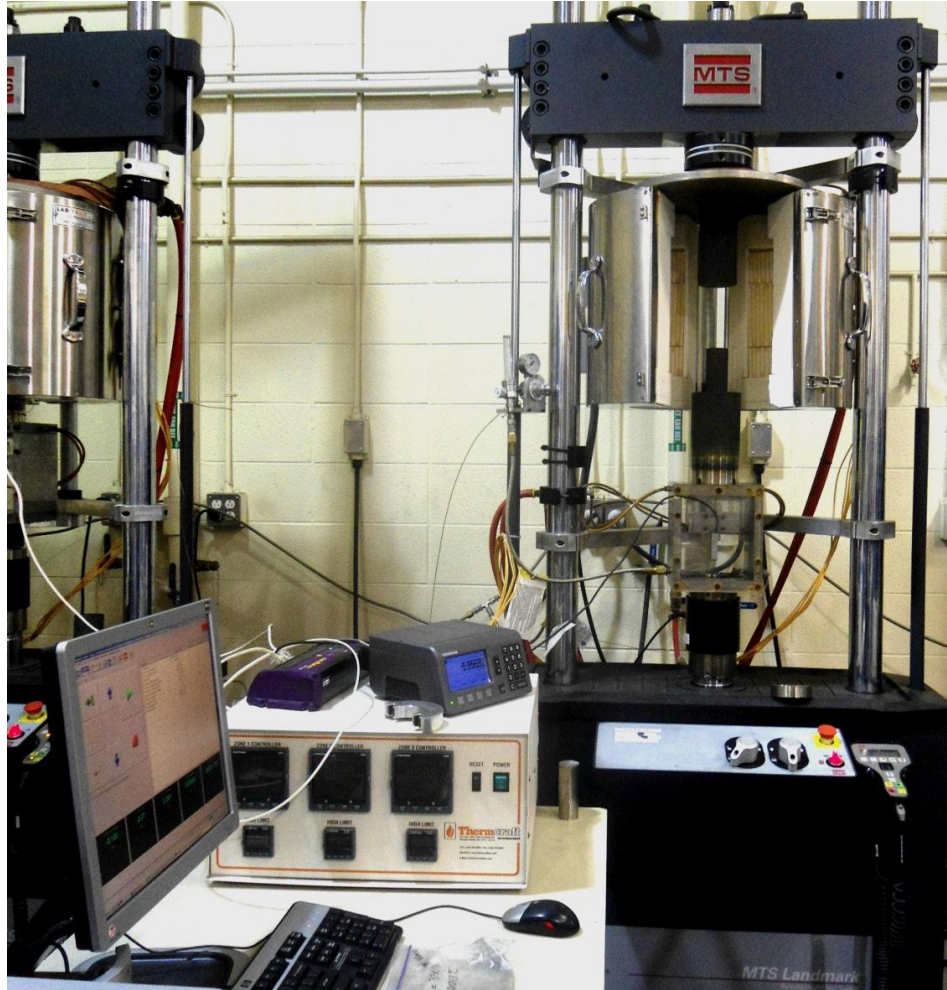


Figure 2.8 : Équipement utilisé par Orangi pour les essais à TA et à haute température sur des échantillons de la pâte monolithique [40].

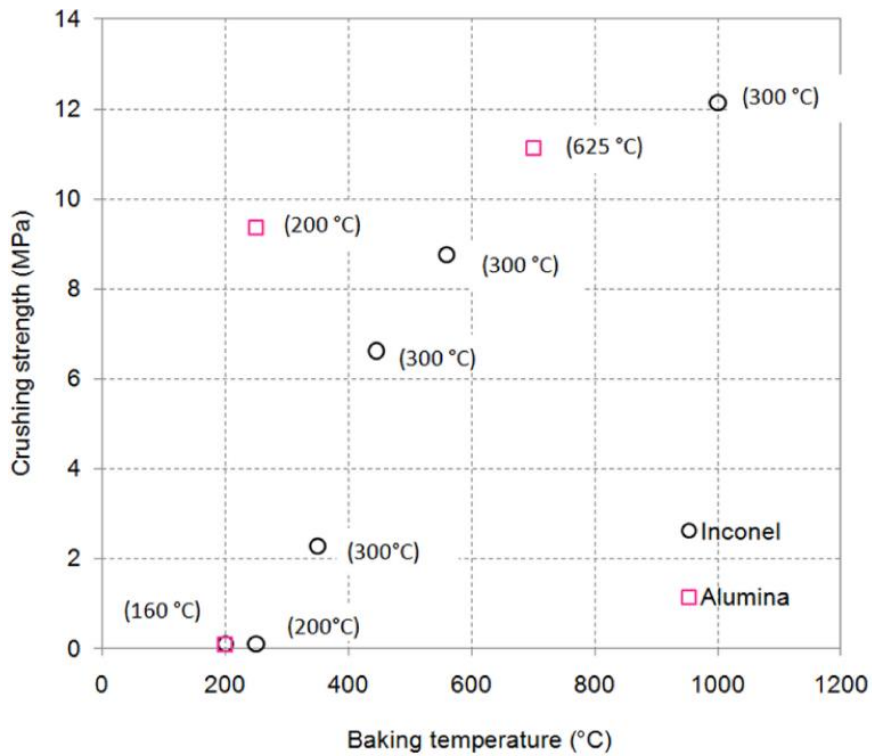


Figure 2.9 : Variation de la résistance en compression de la pâte monolithique déterminée à haute température en fonction de la température de cuisson dans des conteneurs d'alumine et d'inconel [40].

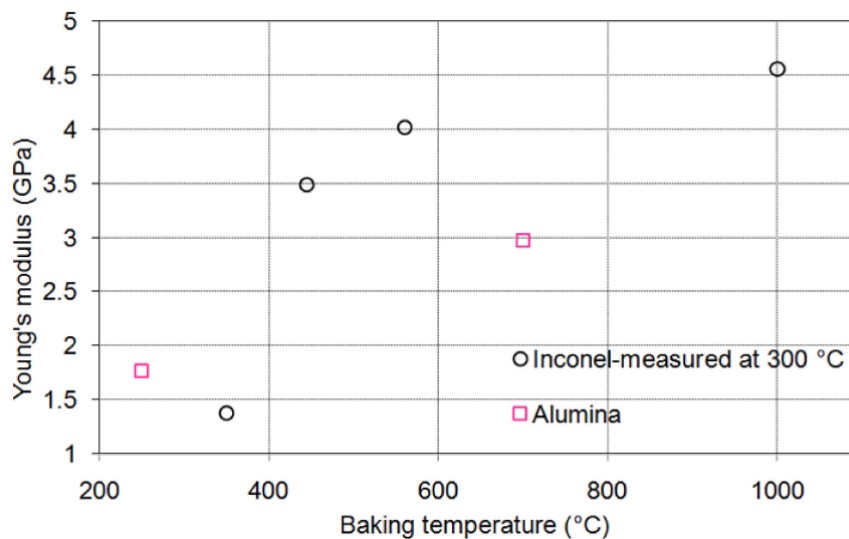


Figure 2.10: Variation du module d'Young de la pâte monolithique déterminé à haute température en fonction de la température de cuisson dans des conteneurs d'alumine et d'inconel [40].

### *Caractérisation par compression triaxiale*

Puisque l'anode de carbone est un matériau cohésif et poreux, son comportement demeure sensible aux contraintes triaxiales. Dans ce contexte, en plus des essais de compression uniaxiale, il devient nécessaire de faire des essais en milieu confiné (triaxial) afin d'observer l'effet de la pression hydrostatique sur la résistance mécanique, ce qui permettra également de caractériser l'enveloppe de rupture du matériau. L'essai de compression triaxiale, est un essai de compression tridimensionnelle tel que présenté à la figure 2.11.

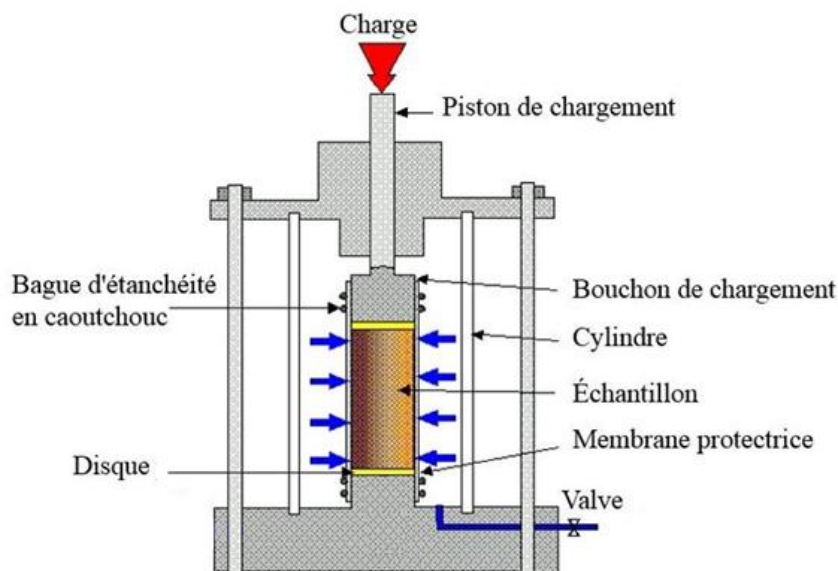


Figure 2.11: Cellule de compression triaxiale [41] (modifiée).

En 2003, D'Amours [42] a réalisé ce genre d'essai à TA sur des échantillons de pâte monolithique crus, partiellement cuits à différents niveaux de cuisson, ainsi que totalement cuits. Ces essais ont été réalisés en utilisant une cellule de compression triaxiale dont le confinement est réalisé par l'application d'une pression hydrostatique à



l'aide d'un fluide. L'échantillon est introduit dans une membrane étanche flexible puis placé dans la cellule [30]. Une fois que la pression de confinement désirée est atteinte, la charge axiale est appliquée progressivement sur l'échantillon à l'aide d'un piston de chargement et ce, jusqu'à la rupture. De cette façon, l'évolution de la résistance ultime à la compression est obtenue pour différents niveaux de confinement. La figure 2.12 montre les résultats obtenus pour les différents essais de compression triaxiale [30].

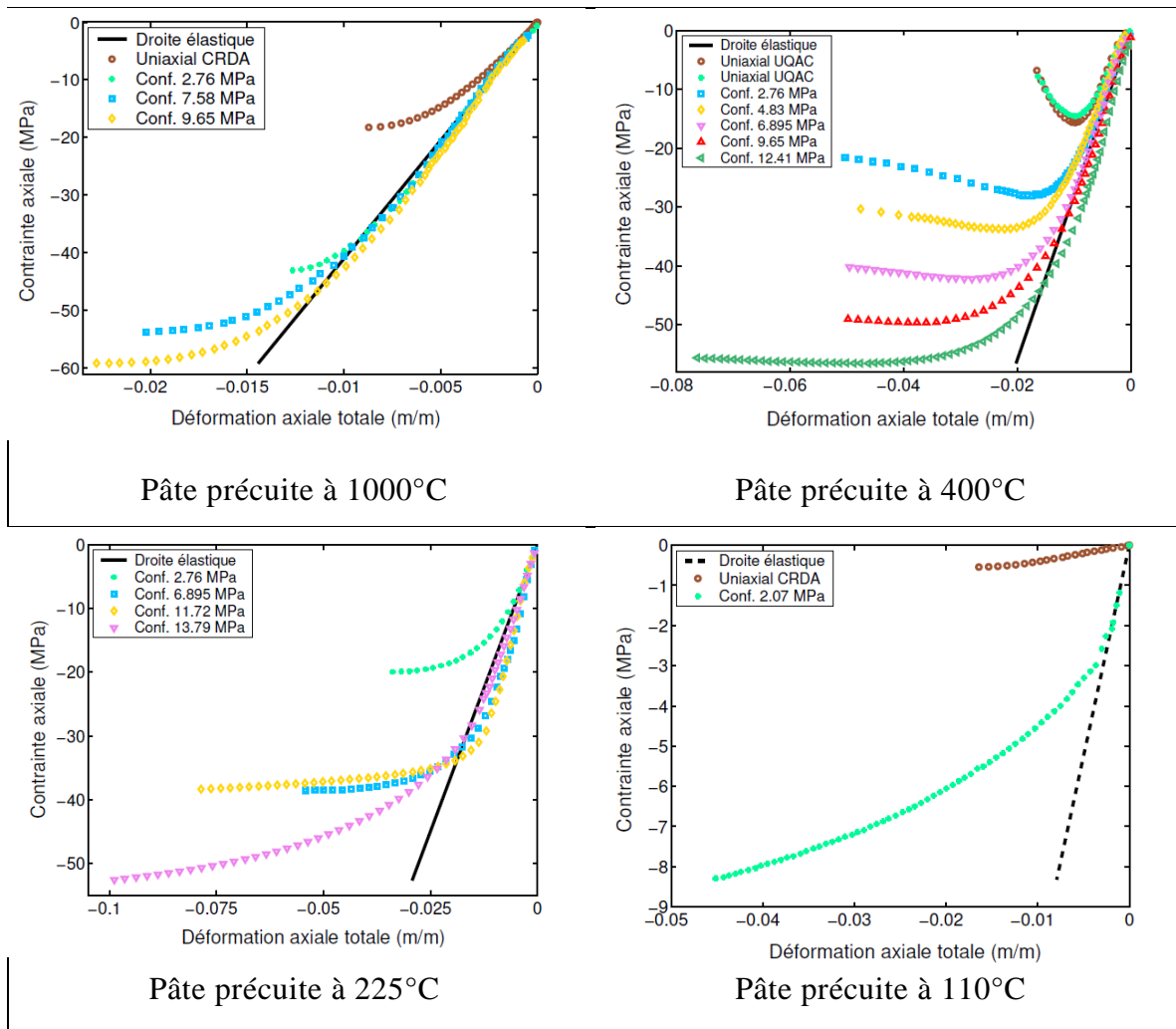


Figure 2.12 : Courbes contrainte vs déformation axiales obtenues pour la pâte monolithique précurées à différentes températures avec confinements [30].



Les résultats obtenus montrent que la résistance ultime à la compression augmente avec la pression de confinement ainsi qu'avec le niveau de cuisson. D'autres travaux ont été réalisés sur d'autres matériaux sensibles à la pression de confinement dont le carbone utilisé pour la fabrication des cathodes [42] et le béton (figure 2.13) [43]. Une même tendance a pu être observée pour le béton en compression triaxiale, telle que la résistance ultime à la compression augmente avec l'augmentation du confinement. Tous les essais de compression triaxiale ont été réalisés sur ces genres de matériaux à TA. Cependant, aucune publication n'a pu être trouvée concernant les essais à chaud.

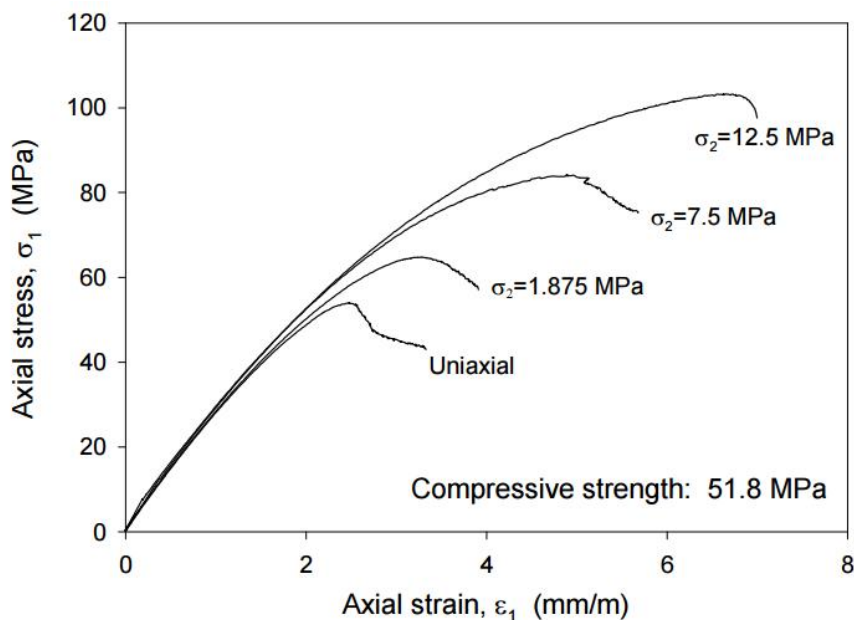


Figure 2.13 : Essais de compression triaxiale sur des échantillons de béton G25 [43].

### ***Caractérisation par fluage/recouvrance***

Le comportement mécanique de l'anode de carbone a longtemps été mal compris vu sa complexité consécutive de la forte variation de ses propriétés en fonction de son niveau de cuisson. Les matériaux à base de carbone utilisés dans l'industrie de

l'aluminium sont des matériaux granulaires hétérogènes liés avec le brai qui peuvent adopter un changement considérable de viscosité en fonction de la température [32], ainsi qu'un comportement visco-élasto-plastique avec adoucissement. Ce genre de comportement peut mener à une certaine dégradation mécanique en raison de l'apparition des fissures au-delà d'un certain seuil de sollicitation et ce, sans atteindre nécessairement la rupture [44]. Jusqu'à présent, peu de travaux portant sur le fluage des anodes de carbone ont été observés en laboratoire en phase de cuisson, et surtout à haute température dans les directions axiales et radiales. Le fluage est un mécanisme de déformation visqueuse qui évolue en fonction du temps pour un matériau qui est soumis à une contrainte  $\sigma$  constante. Les déformations peuvent être réversibles (élastiques, viscoélastiques) et/ou non-réversibles (viscoplastiques). Le phénomène de fluage a été découvert en 1910 par Eugène Freyssinet qui le remarqua pour la première fois sur un pont en béton, en observant une évolution des déplacements de la structure au cours du temps [45]. La déformation en fluage, qui s'accroît généralement avec la température, se décompose en trois phases distinctes : primaire, secondaire et tertiaire (figure 2.14). Ces phases possèdent des caractéristiques différentes en termes de déformation, de vitesse de déformation et d'accélération de déformation.

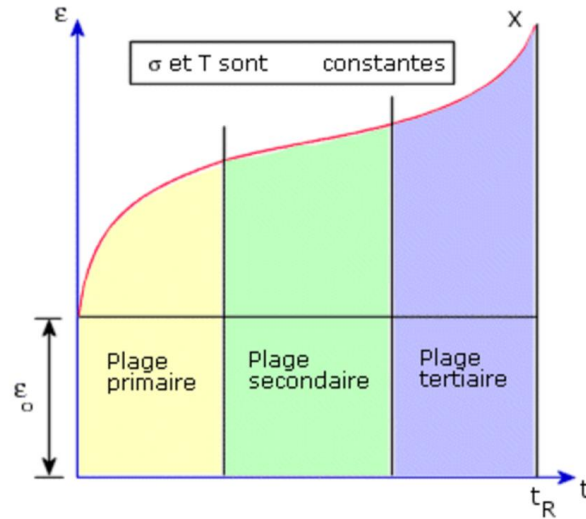


Figure 2.14 : Courbe typique de fluage lors de l'application d'une contrainte constante et en observant la déformation totale en fonction du temps [46].

La phase primaire du phénomène de fluage est caractérisée par une déformation instantanée qui est conséquente de l'intensité de la charge appliquée (élastique ou élastoplastique), suivie d'une déformation viscoélastique  $\varepsilon_{ve}$  et/ou viscoplastique  $\varepsilon_{vp}$  où la vitesse de déformation commence à diminuer pour atteindre une valeur constante. C'est alors le début de la phase secondaire qui est caractérisée par une déformation viscoplastique  $\varepsilon_{vp}$ . La phase tertiaire est caractérisée par une augmentation de la vitesse de déformation durant laquelle le matériau se dégrade, suite à des endommagements avec propagation des fissures jusqu'à atteindre la rupture [44].

Dans le cadre de ce projet, seulement les première et deuxième phases de fluage ont été étudiées. En effet, une estimation du niveau de contrainte vu par l'anode de carbone durant sa cuisson a été jugée insuffisante pour déclencher l'apparition de la phase tertiaire. Afin d'identifier les différents phénomènes/mécanismes en présence, il est également pertinent d'étudier la phase de recouvrance, qui est obtenue suite au retrait

de la contrainte appliquée après l'observation du fluage secondaire. Au retrait de la charge, la déformation instantanée est totalement récupérée si elle est de nature élastique  $\epsilon_e$  (recouvrement élastique instantané), suivie par la déformation viscoélastique  $\epsilon_{ve}$  (recouvrement retardé). La déformation résiduelle est donc de nature viscoplastique  $\epsilon_{vp}$  et/ou élastoplastique (déformation permanente). La figure 2.15 illustre le phénomène de fluage avec ses phases primaire et secondaire, suivie du phénomène de la recouvrance suite au retrait de la contrainte appliquée et ce, en l'absence de déformation élastoplastique.

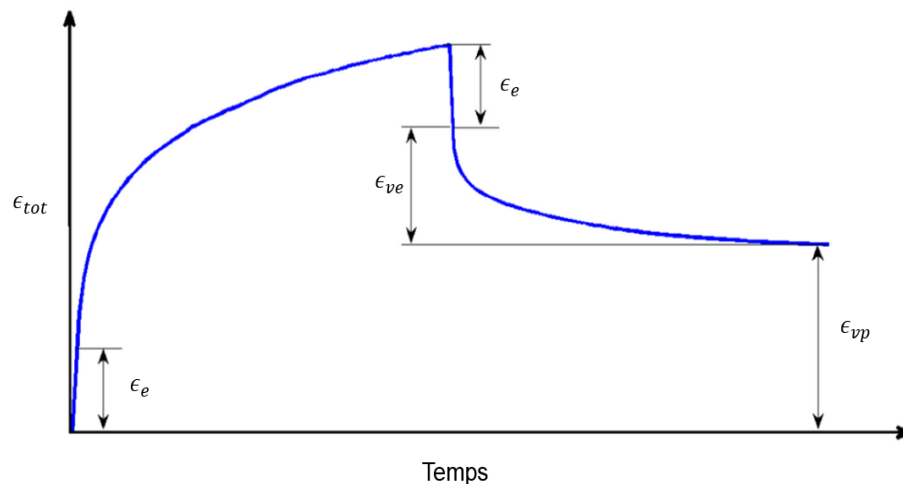


Figure 2.15 : Courbe typique du mécanisme de fluage avec recouvrance [40].

Des travaux ont montré que le phénomène de fluage est bel et bien existant sur des matériaux tels que le béton [47] ainsi que sur des matériaux à base de carbone tels que la pâte monolithique [30]. Cependant, peu de travaux ont été réalisés pour étudier le comportement visco-élasto-plastique des matériaux à base de carbone, surtout dans la direction radiale. En 2004, D'Amours [30] a réalisé des essais de relaxation (une autre

méthode expérimentale qui sert à analyser la viscoélasticité, et qui consiste à mesurer la variation des contraintes dans le temps sous déformation constante) sur des échantillons de la pâte monolithique, qui ont été cuits à 250°C et testés à TA. En plus des mesures de contrainte, les déformations axiales et radiales ont été mesurées. Les résultats obtenus sous une contrainte correspondante à 50% de la valeur de la résistance ultime à la compression  $S_{uc}$ , telle que défini lors des essais de compression uniaxiale, auront permis d'observer le fluage radial. Plus récemment, St-Arnaud et *al.* [39] ont étudié le comportement en fluage à TA sur des échantillons de pâte monolithique cuits à différentes températures (figure 2.16). Le fluage a été étudié à TA dans les directions axiale et radiale avec différents niveaux de contraintes sur des échantillons de pâte monolithique qui ont été cuits jusqu'à 560°C, 750°C et 1000°C. Les essais ont été réalisés dans un environnement contrôlé afin d'éviter la variation de la température lors de la réalisation des essais.

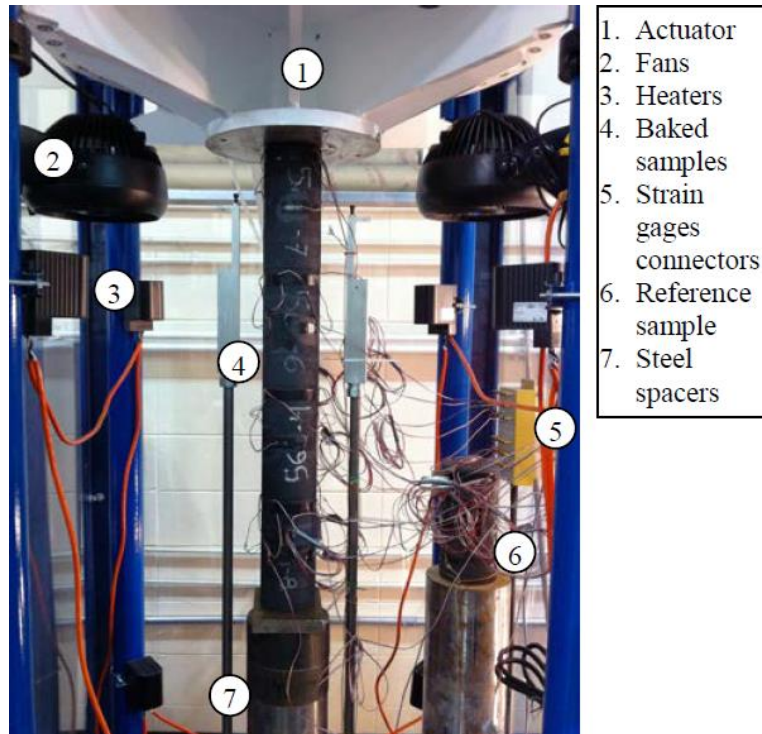


Figure 2.16 : Montage pour les essais de fluage sur des échantillons de pâte monolithique cuits à différentes températures et testés à TA [39].

Les résultats obtenus montrent qu'à partir de la déformation issue du fluage axial (figure 2.17, 2.18 et 2.19), l'augmentation du niveau de la contrainte appliquée prolonge le fluage primaire, ainsi que la vitesse de déformation. De plus, les résultats montrent que la température de cuisson a une importance significative sur le niveau de déformation en fluage. Pour la même contrainte de fluage appliquée, les échantillons cuits à 560°C présentent l'amplitude de déformation axiale la plus élevée, alors que la moins élevée a été observée pour les échantillons qui ont été cuits à 1000°C.

En ce qui concerne le fluage radial (figure 2.20 et 2.21), les mesures de déformation présentent beaucoup de bruit en raison de la sensibilité des équipements de

mesures aux fluctuations de température, des faibles amplitudes de déformation en présence ainsi que d'autres difficultés techniques rencontrées. Ceci a été observé surtout pour des températures de cuisson entre 560°C et 750°C [39].

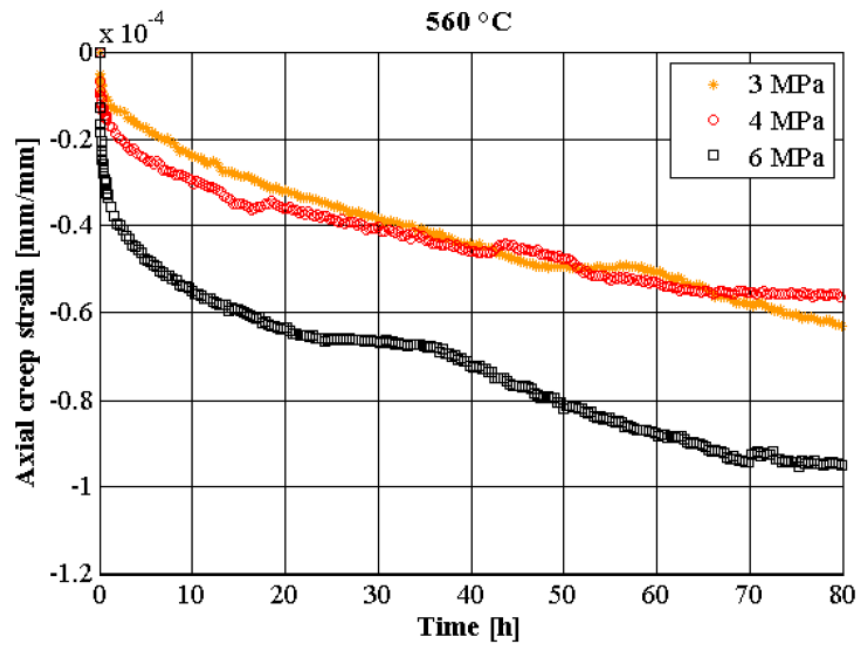


Figure 2.17 : Fluage axial sur des échantillons de la pâte monolithique cuits à 560°C et testés à TA [39].

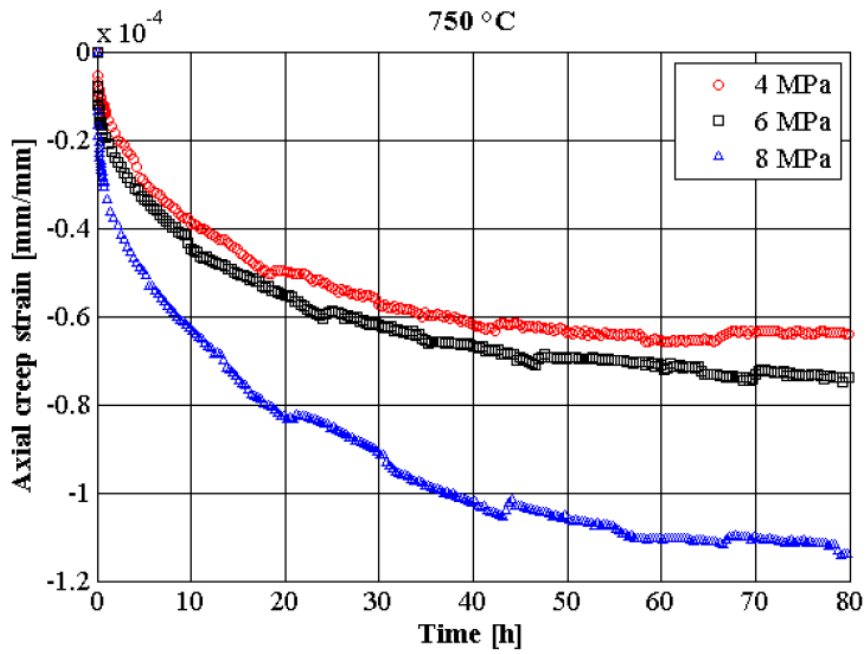


Figure 2.18 : Fluage axial sur des échantillons de la pâte monolithique cuits à  $750^\circ\text{C}$  et testés à TA [39].

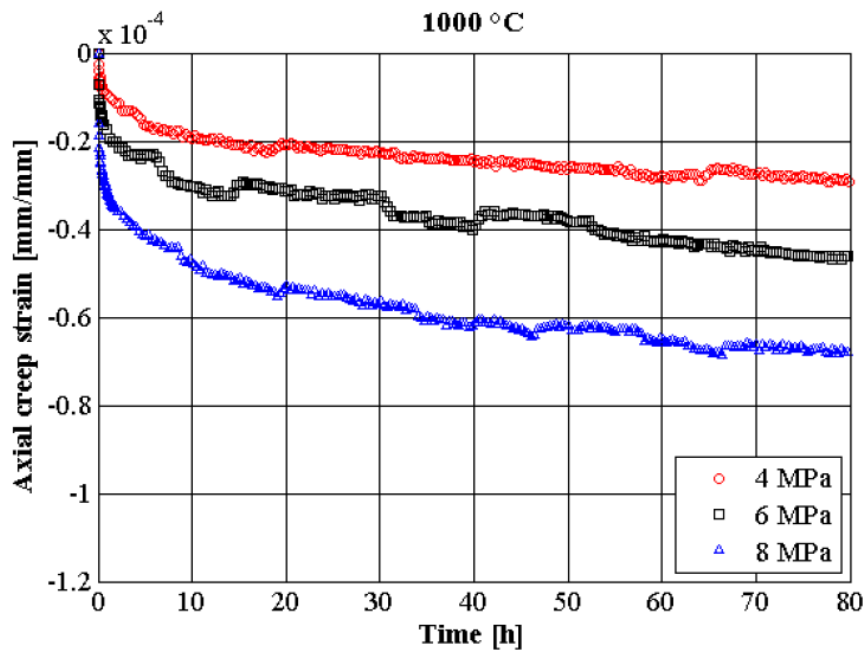


Figure 2.19 : Fluage axial sur des échantillons de la pâte monolithique cuits à  $1000^\circ\text{C}$  et testés à TA [39].



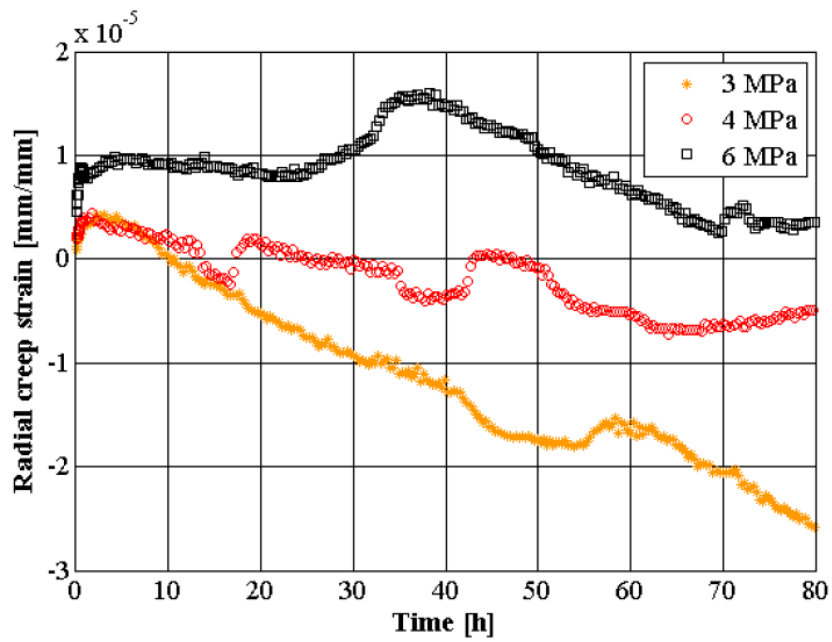


Figure 2.20 : Fluage radial sur des échantillons de la pâte monolithique cuits à 750°C et testés à TA [39].

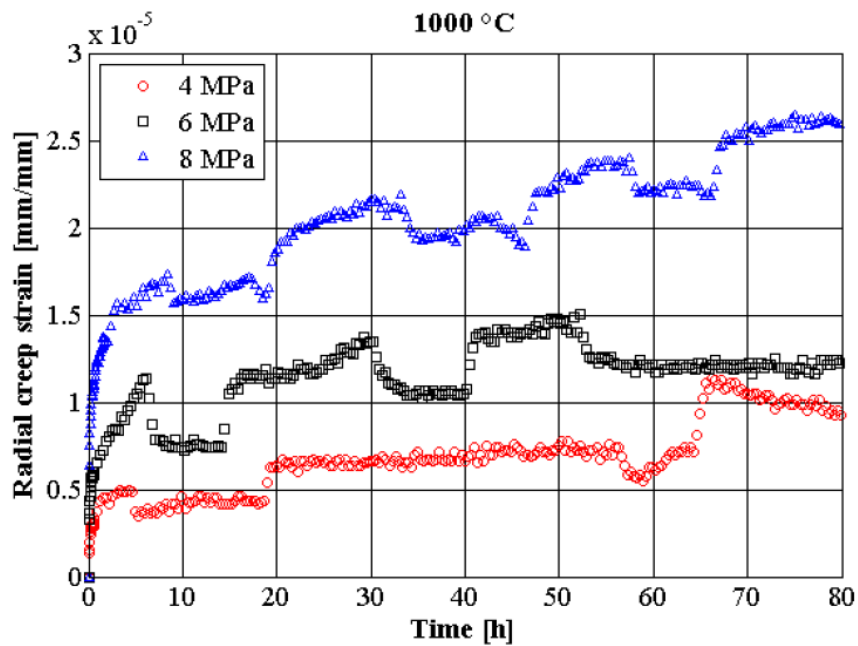


Figure 2.21 : Fluage radial sur des échantillons de la pâte monolithique cuits à 1000°C et testés à TA [39].

Dans d'autres travaux, Orangi et *al.* [40] ont étudié le comportement en fluage dans la direction axiale de la pâte monolithique à travers des essais réalisés à TA, ainsi qu'à des températures plus élevées sur des échantillons cuits à différents niveaux de cuisson. Les essais à TA ont été réalisés sur des échantillons cuits à 200°C, 250°C et 1000°C et soumis à des contraintes de 1.3 MPa, 2 MPa et 6 MPa respectivement (figure 2.22). Les résultats ont montré que le taux de déformation en fluage spécifique diminue avec la température de cuisson.

En ce qui concerne les essais à haute température, les échantillons de pâte monolithique ont été cuits à 350°C, 445°C et 1000°C. Ces derniers ont été soumis à des contraintes de 2 MPa pour la température de 350°C, ainsi que 4.5 MPa pour les températures de 445°C et 1000°C. Les résultats obtenus ont montré la même tendance que les essais réalisés à TA, montrant une diminution du taux de déformation en fluage avec la température de cuisson et ce, en allant de 350°C à 1000°C (figure 2.23).

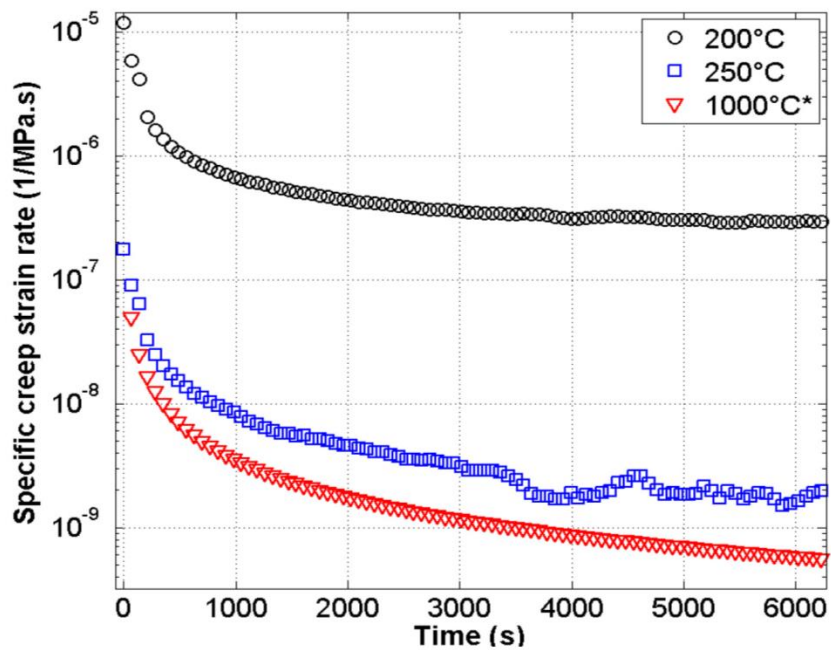


Figure 2.22 : Taux de déformation en fluage spécifique à TA sur des échantillons de la pâte monolithique cuits à 200°C, 250°C et 1000°C [40].

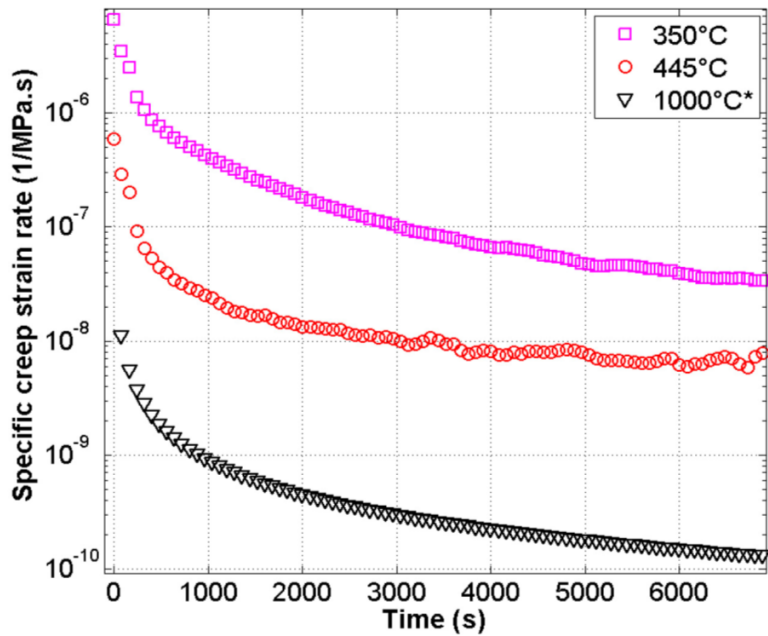


Figure 2.23 : Taux de déformation en fluage spécifique pour des échantillons de la pâte monolithique testés à 300°C et cuits à 350°C ,445°C et 1000°C [40].

Pour des températures de cuisson moins élevées, les essais n'ont pas pu être réalisés puisque les échantillons se sont cassés lors du préchauffage. Ceci peut être expliqué par le fait que la phase liante est devenue très molle, de sorte que l'échantillon ne peut pas supporter la précharge lors de la montée en température, avant d'atteindre la température cible pour réaliser l'essai.

D'autre part, Orangi et *al.* [40] ont étudié la recouvrance de la pâte monolithique. Les résultats obtenus à haute température permettent d'identifier les déformations viscoélastique et viscoplastique, ainsi que la déformation due à la recouvrance qui a été partiellement récupérée (figure 2.24). De plus, ces essais ont également montré que les déformations viscoélastiques et viscoplastiques diminuent avec l'augmentation de la température de cuisson et qu'à 1000°C, la recouvrance est négligeable devant celles de 350°C et 445°C.

Étant donné les difficultés techniques souvent rencontrées pour les essais à haute température, seule la déformation axiale a été mesurée pour la majorité des études de déformation sur des matériaux à base de carbone portant sur le fluage/recouvrance.

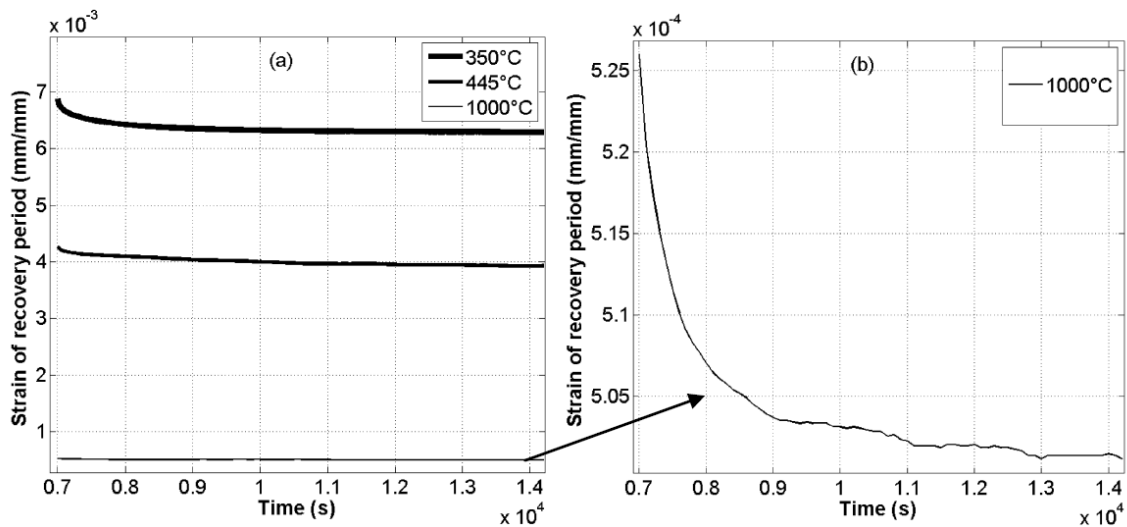


Figure 2.24 : Essais de recouvrance à 300°C sur des échantillons de la pâte monolithique cuits à a) 350°C, 445°C et 1000°C et b) 1000°C [40].

## 2.4 Sommaire

Cette revue bibliographique aura permis d'illustrer la constitution et le mode de fabrication des anodes, ainsi que de bien comprendre les différents phénomènes physiques et chimiques des matériaux à base de carbone pendant la phase de cuisson. De plus, cette revue aura permis d'établir les bases sur l'avancement des travaux réalisés sur des matériaux à base de carbone et ce, suivant différentes approches de caractérisation thermo-chimique via la dilatométrie et la thermogravimétrie, ainsi que de la caractérisation thermomécanique via les essais de compression uniaxiale et triaxiale, ainsi que les essais de fluage/recouvrance. Dans le prochain chapitre, un programme expérimental permettant la caractérisation thermo-chimio-mécanique des anodes de carbone est présenté et ce, à travers des essais suivant une méthodologie bien définie.

## Chapitre 3

### Montages et méthodes expérimentales

#### 3.1 Introduction

Afin de caractériser le comportement thermo-chimio-mécanique de l'anode de carbone, il est pertinent d'avoir des échantillons de grade industriel et ce, dans le but d'obtenir une idée réaliste de ce qui se passe lors de la cuisson. Pour cela, un échantillonnage en usine a été réalisé à partir de la ligne de production avec notre partenaire industriel AAI. Cette étape a été suivie par la préparation des échantillons d'anode dépendamment des dimensions exigées pour les essais réalisés. Par la suite, une procédure de caractérisation de la densité et de la résistivité a été réalisée avant de procéder à des cuissons partielles à différentes températures dans le but de conditionner les dits échantillons aux différents tests à réaliser. Enfin, une caractérisation thermo-chimio-mécanique a été effectuée via des essais sur différents échantillons d'anode de carbone crus, partiellement cuits ainsi que totalement cuits.

#### 3.2 Échantillonnage en usine

Afin d'avoir des échantillons d'anode de carbone représentatifs de la réalité industrielle, ces derniers ont été extraits directement à partir des blocs d'anodes de carbone industrielles qui ont été fabriquées dans la chaîne de production d'AAI. Les échantillons crus ont été prélevés de huit différentes anodes crues. Ces anodes ont été fabriquées avec des paramètres variables, afin d'obtenir des résultats statistiquement représentatifs de la réalité industrielle. En ce qui concerne les échantillons totalement

cuits, ils ont été prélevés d'une même anode industrielle cuite jusqu'à environ 1200°C. De plus, pour une même anode, les échantillons provenaient d'emplacements différents sur ladite anode. La figure 3.1 montre le plan de carottage des échantillons.

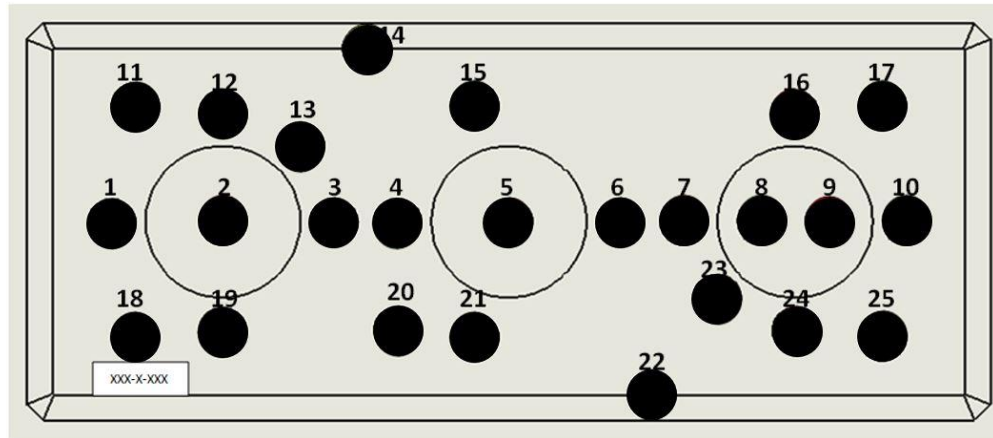


Figure 3.1 : Plan d'emplacement des carottes dans une anode industrielle.

Suite à l'étape de carottage réalisée à l'usine, les carottes obtenues, ayant 650 mm de hauteur et 75 mm de diamètre ont été coupées en longueur au laboratoire de la Chaire UQAC/AAI (CURAL).

### 3.3 Préparation des échantillons

#### 3.3.1 Carottage et usinage

Après le découpage en longueur des grosses carottes extraites directement à partir des anodes industrielles, une nouvelle procédure de carottage a été réalisée sur les carottes de 75 mm de diamètre à l'aide d'une carotteuse de plus petite taille (figure 3.2) de manière à avoir des échantillons de 50 mm de diamètre et 130 mm de longueur et ce, dans le but d'avoir des dimensions convenables pour nos appareils expérimentales. Après le carottage, les échantillons de carbone cylindriques ont été acheminés pour

l'usinage sur un tour afin d'avoir un parallélisme parfait entre les deux bases de l'échantillon, ainsi que des états de surface convenables pour les différents essais à réaliser. À ce stade-ci, et avant la réalisation des essais, la détermination de certaines propriétés physiques telle que la résistivité électrique et la densité apparente, ont été nécessaires pour donner des informations importantes sur la qualité des anodes fabriquées, ainsi que sur les défauts de fabrication qui ont pu être rencontrés comme la fissuration. Les échantillons de mauvaise qualité ont été rejetés.



Figure 3.2 : Carotteuse du laboratoire de la Chaire UQAC/AAI (CURAL).



### 3.3.2 Mesure de la densité

La densité apparente  $D$  a été déterminée selon la norme ASTM D5502-00 (2010) [48] via des mesures physiques des échantillons cylindriques d'anodes de carbone utilisées dans l'industrie de l'aluminium. Les mesures de densité ont permis de sélectionner trois sortes d'échantillons : échantillon avec une densité haute, moyenne et faible. Ceci a permis de diversifier l'échantillonnage lors de la réalisation des essais telle que les trois sortes d'échantillons ont été pris pour chaque essai (trois répétitions) et ce, afin d'avoir une moyenne représentative de la réalité industrielle. La procédure se décrit comme suit :

- ❖ Peser l'échantillon à l'aide d'une balance avec une précision de 0.01 g.
- ❖ Mesurer le diamètre  $d$  et la longueur  $l$  de l'échantillon à l'aide d'un micromètre avec une précision de 0.001 cm :
  - ✓ En faisant deux lignes perpendiculaires (deux diamètres) entre elles et passant par le centre d'une des bases circulaires de l'échantillon cylindrique, on obtient 4 points à l'intersection des lignes avec le cercle. Par la suite, on trace 4 lignes verticales issues de ces 4 points sur la face latérale, tout le long de l'échantillon jusqu'à la deuxième base circulaire (figure 3.3).
  - ✓ La longueur de l'échantillon a été obtenue comme la valeur moyenne des quatre hauteurs mesurées (figure 3.3).
  - ✓ Le diamètre de l'échantillon est obtenu en prenant la valeur moyenne des huit diamètres mesurés (figure 3.4).

- ✓ La densité apparente a été obtenue par le rapport entre la masse  $m$  et le volume (équation 3.1) de l'échantillon :

$$D = \frac{m}{\left(\frac{\pi}{4}\right) \cdot d^2 \cdot l} \quad (3.1)$$

Les mesures de la densité ont été réalisées sur tous les échantillons crus et totalement cuits. Pour les échantillons initialement crus, et qui ont été cuits partiellement à certains niveaux de cuisson, une autre campagne de mesure de densité a été réalisée après la cuisson partielle.

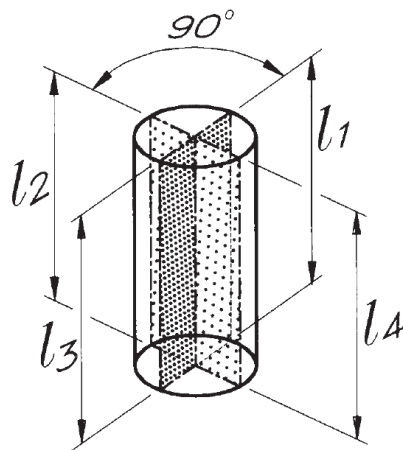


Figure 3.3 : Détermination de la longueur moyenne [48].

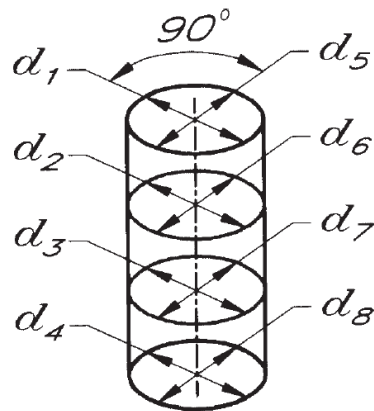


Figure 3.4 : Détermination du diamètre moyen [48].

### 3.3.3 Mesure de la résistivité électrique

La résistivité électrique a été déterminée selon la norme ASTM D6120-97 (2007) [49] sur des échantillons cylindriques des anodes de carbone comme suit :

- ❖ L'échantillon cylindrique de longueur  $l$  de diamètre  $d$  a été fixé entre deux plaques planes en cuivre (une est fixe et une mobile). Ces deux plaques sont en contact avec les deux bases de l'échantillon, le tout réalisé sur un montage fabriqué à l'UQAC, suivant les exigences de la norme ASTM D6120-97.
- ❖ La mesure de la résistivité électrique est basée sur une méthode simple qui consiste à passer un courant électrique à travers la longueur de l'échantillon, et à mesurer la différence de voltage entre deux positions sur l'échantillon dont la distance entre ces deux positions est connue.

La résistivité électrique constitue un bon indicateur du niveau de fissuration de l'anode. Une résistivité électrique élevée indique que l'échantillon contient beaucoup de microfissures, alors qu'une résistivité électrique plus basse indique que l'échantillon est

moins fissuré. Les mesures de résistivité ont été réalisées sur l'ensemble des échantillons crus et totalement cuits. Pour les échantillons partiellement cuits à certains niveaux de cuisson, une autre campagne de mesure de résistivité électrique a été réalisée dans le but d'avoir une idée sur la fissuration qui a pu être générée durant ladite cuisson (les échantillons de mauvaise qualité possédants un pourcentage élevé de fissuration, issus d'une mesure de résistivité électrique élevée, ont été automatiquement retirés de l'échantillonnage).

### **3.4 Identification des températures des cuissons partielles**

Dans ce projet, la cuisson partielle des échantillons a été réalisée dans un four de laboratoire de type PYRADIA (figure 3.5), en tenant compte des conditions de cuisson employées dans un four industriel. En ce qui concerne les échantillons totalement cuits, ces derniers ont été obtenus d'une anode industrielle totalement cuite jusqu'à environ 1200°C.



Figure 3.5 : Four de cuisson Pyradia au laboratoire carbone de la Chaire UQAC/AAI (CURAL).

Pour se faire, les échantillons ont été disposés afin de maintenir un espace tout autour de chaque échantillon qui sera par la suite comblé par le coke de garnissage. Une couche du coke de garnissage a également été disposé au-dessous et au-dessus des échantillons avant de fermer le four. La cuisson a été effectuée avec un taux de chauffe de  $11^{\circ}\text{C/h}$ , considéré comme étant la valeur moyenne dans les fours de cuisson industriels et ce, allant de la TA jusqu'à la température de cuisson désirée. Les températures de cuisson partielle ont été choisies entre  $300^{\circ}\text{C}$  et  $600^{\circ}\text{C}$  en se référant aux travaux précédemment réalisés par Lu et *al.* [32], et qui ont montré que la plupart des réactions chimiques significatives se produisent dans cet intervalle de température. Le tableau 3.1 montre les températures de cuisson partielle pour les essais qui ont été réalisés à chaud et à TA.

Cette étape a donc permis de compléter le lot d'échantillons comportant des échantillons crus, partiellement cuits (300°C, 400°C, 500°C et 600°C) ainsi que totalement cuits (1200°C). Ces échantillons ont été répartis parmi les différents essais à réaliser. Il a été aussi pertinent de réaliser des essais sur des échantillons d'anode de carbone à des températures critiques telles que 120°C qui est la température de ramollissement de brai, 180°C qui est une température voisine de la température de formation des anodes ainsi que 230°C qui est la température juste avant le dégagement des volatiles. À ces températures, l'échantillon est encore à l'état cru et donc, la cuisson n'a pas encore commencé. Seule la viscosité du brai change ce qui rend l'échantillon plus mou.

Tableau 3.1 : Tableau présentant les températures de cuisson des échantillons testés à chaud et à TA.

Essais à TA	Essais à chaud
Température de cuisson [°C]	Température de cuisson [°C]
25 (Anode crue)	120 (Anode crue)
300	180 (Anode crue)
400	230 (Anode crue)
500	300
600	400
1200 (Anode totalement cuite)	500
	600
	1200 (Anode totalement cuite)

### **3.5 Caractérisation thermochimique**

Cette section est découpée en deux parties. La première partie est consacrée à l'essai de dilatométrie qui a servi à la mesure de la déformation libre de l'échantillon pendant sa phase de cuisson, alors que la deuxième est consacrée à l'essai de thermogravimétrie qui a servi à l'identification de la température des essais qui ont été réalisés à chaud.

#### **3.5.1 Essai de dilatométrie**

Cet essai a été réalisé à l'aide d'un dilatomètre spécialisé (préalablement calibré) permettant l'étude des matériaux thermo-réactifs (figure 3.6).

L'échantillon de 32 mm de diamètre et 100 mm de longueur (ces dimensions ont été choisies suivant les exigences imposées par le dilatomètre) est fixé à l'intérieur d'une enceinte qui est lui-même rattaché à un support. Un disque de graphite est déposé sur la surface supérieure de l'échantillon afin d'assurer la stabilité du point de mesure ; mesure qui est réalisée à l'aide d'un LVDT (Linear Variable Differential Transformer) d'une précision de l'ordre de  $\pm 1 \mu\text{m}$ , et connecté à une tige d'alumine. Les déplacements mesurés via un système d'acquisition de données (Keithly, 2700) [50] permettent donc de capturer l'ensemble des dilatations/contractions au cours d'un processus de cuisson. Le chauffage est ici contrôlé par un thermocouple en contact direct avec l'échantillon.

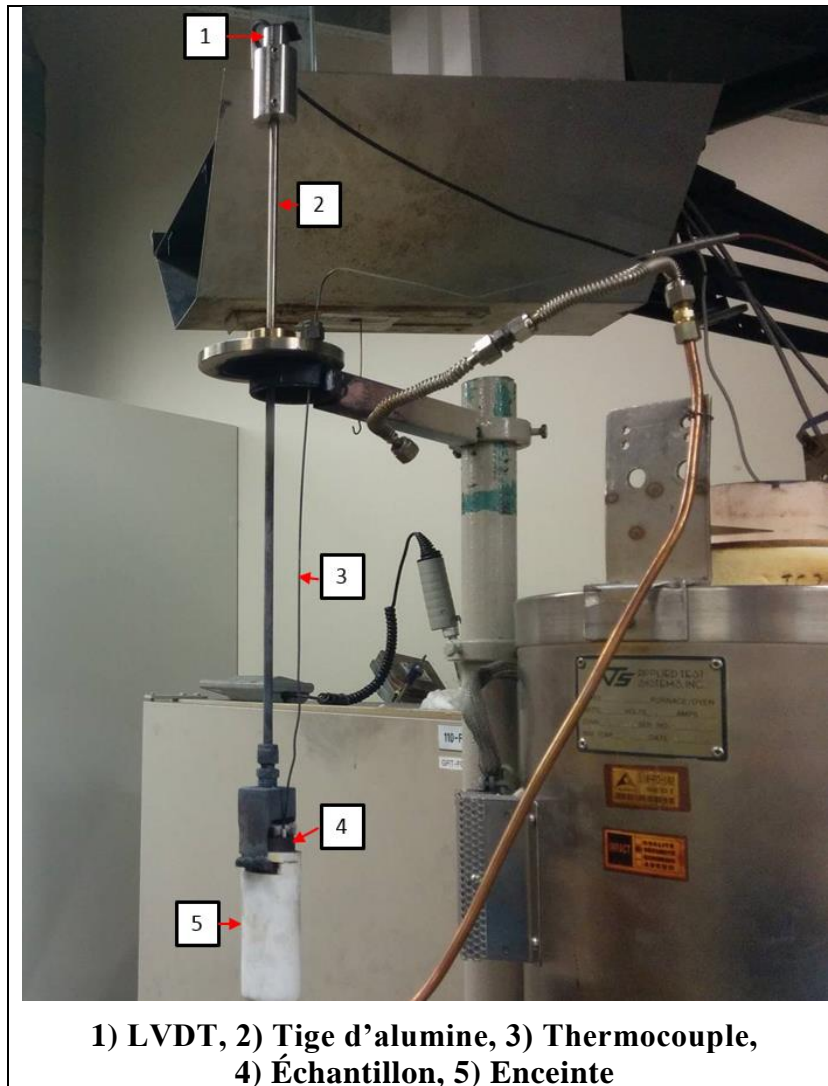


Figure 3.6 : Montage de dilatométrie.

Durant l'essai de dilatométrie, la dilatation libre a été mesurée durant un cycle complet de cuisson d'un échantillon d'anode de carbone cru extrait d'une anode industrielle. Le scénario de cuisson a été réalisé via une montée en température jusqu'à 1100°C suivie d'un refroidissement jusqu'à la TA. Une nouvelle montée en température a été réalisée suite au refroidissement et ce, afin de corroborer la courbe de dilatation thermique : pour vérifier si les courbes de refroidissement et de la remontée en



température se coïncident, puisque toutes les déformations d'origine chimique ont eu lieu et donc, la déformation d'origine thermique issue de la dilatation thermique peut être identifiée. L'essai a été réalisé dans un environnement inerte pour éviter l'oxydation de l'échantillon.

### **3.5.2 Essai de thermogravimétrie**

Les essais à TA et à chaud ont été réalisés sur différents échantillons préculs à des températures passantes de l'état cru à l'état cuit et ce, afin de mesurer l'impact de la température de test versus la température de cuisson. Concernant les essais à chaud sur les échantillons cuits à un certain niveau de cuisson, les travaux antérieurs sur les matériaux à base de carbone ont réalisé les essais à la température de cuisson de l'échantillon, ou légèrement inférieure. Dans le cadre de ce projet, les essais à haute température ont été réalisés à une température qui a été identifiée via la thermogravimétrie.

La réalisation d'essais à chaud représentatifs du niveau de cuisson exige le maintien de l'état chimique de l'échantillon durant l'essai. Il est de toute première importance d'éviter que les réactions chimiques se poursuivent au cours de la réalisation des essais à chaud. En d'autres termes, en faisant cuire un échantillon à une certaine température, il est fort probable que la cuisson ne soit pas achevée et donc, que les réactions chimiques ne soient pas complétées. Suite à son refroidissement, lorsque l'échantillon subit une nouvelle montée en température, les réactions chimiques vont se poursuivre à partir d'une certaine température. Cette température de reprise des réactions

chimiques ne doit donc pas être dépassée et ce, afin de ne pas altérer l'état de l'échantillon. Dans ce contexte, existerait-il une température critique à laquelle les essais mécaniques sur des échantillons cuits à une température donnée pourraient être réalisés, et qui permettrait l'obtention de résultats représentatifs du niveau de cuisson atteint ? L'essai de thermogravimétrie aura permis de répondre à ce questionnement.

Le principe de l'essai consiste à mesurer la perte de masse en fonction de la température de cuisson. La perte de masse est une indication de dégagement des matières volatiles et donc, de l'évolution de la cuisson. Les échantillons partiellement cuits à un certain niveau de cuisson ont été soumis à un essai de thermogravimétrie et ce, afin d'observer à partir de quelle température les réactions chimiques reprennent. Les essais ont été réalisés à l'aide du montage montré à la figure 3.7. L'échantillon d'anode cylindrique a été monté en température dans une atmosphère inerte avec le taux de chauffe usuel et durant laquelle la perte de masse a été mesurée à l'aide d'une balance (Mettler Toledo AG285,  $\pm 0.01$  g). La perte de masse et la température ont été mesurées en continu à l'aide d'un système d'acquisition de données (Keithly, 2700).



Figure 3.7 : Système d'analyse thermogravimétrique (TGA).

### **3.6 Caractérisation thermomécanique**

L'anode de carbone est un matériau poreux qui possède une structure granulaire hétérogène à l'échelle macroscopique et dont les particules d'agrégats sont fixées à l'aide d'un liant (brai). Pendant le processus de cuisson, c'est ce liant qui subit une forte variation de sa viscosité lors de la montée en température et qui durcit au cours de la cuisson; assurant ainsi la liaison avec les autres constituants dans l'anode. Ce comportement a un impact direct sur les propriétés mécaniques du matériau.

### 3.6.1 Essai de compression uniaxiale

Dans cette section, les détails associés à l'identification de l'évolution des propriétés élastiques ( $E, \nu$ ) et de la résistance ultime à la compression  $S_{uc}$  à différents niveaux de cuisson via l'essai de compression uniaxiale sont présentés. Les résultats obtenus ont été récemment publiés dans un article de conférence [51].

#### 3.6.1.1 Essai à TA

Tel que défini au tableau 3.1, les essais de compression uniaxiale à TA ont été réalisés sur des échantillons d'anode de carbone crus, partiellement cuits (300°C, 400°C, 500°C, 600°C) et totalement cuits (1200°C). Les échantillons ont été testés à l'aide d'une presse Gleeble® 3800 (figure 3.8), suivant la procédure développée précédemment par Racine et *al.* [52] (Dimensions des échantillons :  $d = 50$  mm et  $l = 100$  mm suivant les exigences imposées par notre appareil). La presse Gleeble® est une presse hydraulique horizontale. Les déplacements axiaux et radiaux ont été mesurés respectivement à l'aide d'un extensomètre axial et d'un extensomètre radial (figure 3.8) d'une précision de l'ordre de  $\pm 1$   $\mu\text{m}$ . Entre les extrémités de l'échantillon cylindrique et les mores de la presse, deux feuilles de graphites ont été ajoutées de part et d'autre afin d'assurer un contact parfait avec l'échantillon.

L'essai de compression uniaxiale a été réalisé suivant la norme ASTM C469/C469M–10 standard [53], exigeant l'application initial de deux cycles de chargements-déchargements à 20% de la résistance ultime à la compression sur l'échantillon de carbone et ce, afin d'assurer un bon conditionnement de l'échantillon en

fermant les pores, et en éliminant les contraintes résiduelles qui ont pu être induites à l'échantillon lors de son processus de fabrication. Finalement, un troisième chargement jusqu'à la rupture est appliqué, permettant de déterminer la résistance ultime à la compression  $S_{uc}$  correspondant à la valeur maximale de la contrainte atteinte.

Le module d'Young  $E$  est obtenu à partir de la valeur moyenne de la pente de la partie élastique linéaire de la courbe contrainte vs déformation obtenue des deuxième et troisième chargements.

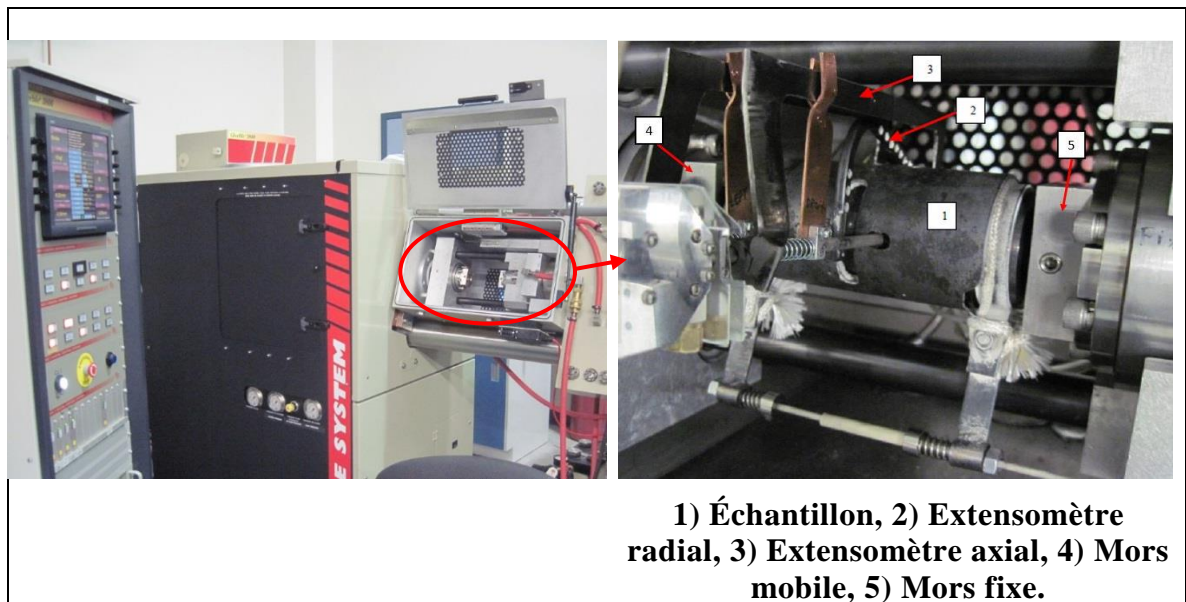


Figure 3.8 : Presse Gleeble® 3800.

Quant au coefficient de Poisson  $\nu$ , ce dernier a été identifié comme étant le rapport entre la déformation radiale ( $\Delta\epsilon_{radiale}$ ) et la déformation axiale ( $\Delta\epsilon_{axiale}$ ) tel que :

$$\nu = - \frac{\Delta \varepsilon_{radiale}}{\Delta \varepsilon_{axiale}} \quad (3. 2)$$

Comme pour l'identification du module d'Young, le coefficient de Poisson est un paramètre élastique et donc, il doit être identifié à partir de la partie élastique comme la moyenne du deuxième et troisième chargement de l'essai de compression uniaxiale.

Il faut noter que trois répétitions ont été réalisées pour chaque type d'essai, pour une condition à un niveau de cuisson donné.

#### **3.6.1.2 Essai à chaud**

La Presse Gleeble<sup>®</sup> est une presse hydraulique dont la montée en température de l'échantillon est réalisée par le passage d'un courant au travers l'échantillon (effet Joule) qui est en contact avec les deux mors de la presse (figure 3.8). La température est contrôlée par un thermocouple qui est en contact direct avec le centre de l'échantillon. Cependant, afin d'assurer un bon passage du courant électrique, un minimum de contact avec l'échantillon est nécessaire, ce qui exige l'application d'une légère précharge de l'ordre de 0.6 kN (0.3 MPa). Malheureusement, le matériau étant très mou entre 120°C et 400°C (avant cokéfaction du brai) n'est pas en mesure de résister à cette précharge, aussi minime soit-elle.

La réalisation des essais à chaud a donc été décomposée en deux parties. Les échantillons d'anode de carbone partiellement cuits à 500°C et plus (500°C, 600°C et 1200°C) ont été testés avec la presse Gleeble<sup>®</sup>. Quant aux échantillons partiellement

cuits à 400°C et moins (300°C et 400°C) ainsi que pour les échantillons crus (testés à 120°C, 180°C et 230°C), ces derniers n'ont pas pu être testés avec cette presse, exigeant ainsi le développement d'une nouvelle approche. En effet, la texture très molle des échantillons aux températures de cuisson entre 120°C et 400°C rend la réalisation des essais très complexe. De plus, la très faible amplitude des déplacements exige l'utilisation des LVDT de haute précision. Nous avons alors considéré l'utilisation d'une presse mécanique verticale CRIMS® (figure 3.9) ayant une capacité de chargement de 100 kN et dont le chauffage est réalisé avec un four en atmosphère inerte afin d'éviter l'oxydation de l'échantillon ( $d = 50$  mm,  $l = 125$  mm suivant les exigences imposées par notre appareil).

Initialement, la presse CRIMS® disposait seulement de deux LVDT axiaux (avec une précision de l'ordre de  $\pm 1$   $\mu$ m) permettant de mesurer le déplacement axial. Afin d'être en mesure d'identifier le coefficient de Poisson, la presse a été modifiée par l'ajout des deux LVDT radiaux (avec une précision de l'ordre de  $\pm 1$   $\mu$ m) permettant de mesurer la valeur moyenne du déplacement radial à n'importe quelle température (figure 3.10). Les LVDT axiaux sont localisés à l'extérieur du four et fixés à une tige d'alumine passant à l'intérieur d'un tube fixé à l'aide de vis de blocage telle que montrée à la figure 3.11. Les vis de blocage sont connectées à des plateaux en acier qui sont en contact direct avec les deux bases de l'échantillon cylindrique. La température est affichée à l'aide d'un Datalogger et est contrôlée à l'aide d'un thermocouple placé au centre de l'échantillon à tester. En ce qui concerne les LVDT radiaux, ils ont été ajoutés à la presse CRIMS® en modifiant le montage original. Comme pour les LVDT axiaux, chacun des LVDT

radiaux est fixé sur un tube et connecté à une tige d'alumine. Les tubes qui supportent les LVDT radiaux ont été fixés à l'aide des deux trous taraudés sur un gros cylindre d'isolation thermique. Les tiges d'alumine sont insérées à l'intérieure des tubes en assurant un contact direct avec la périphérie de l'échantillon.

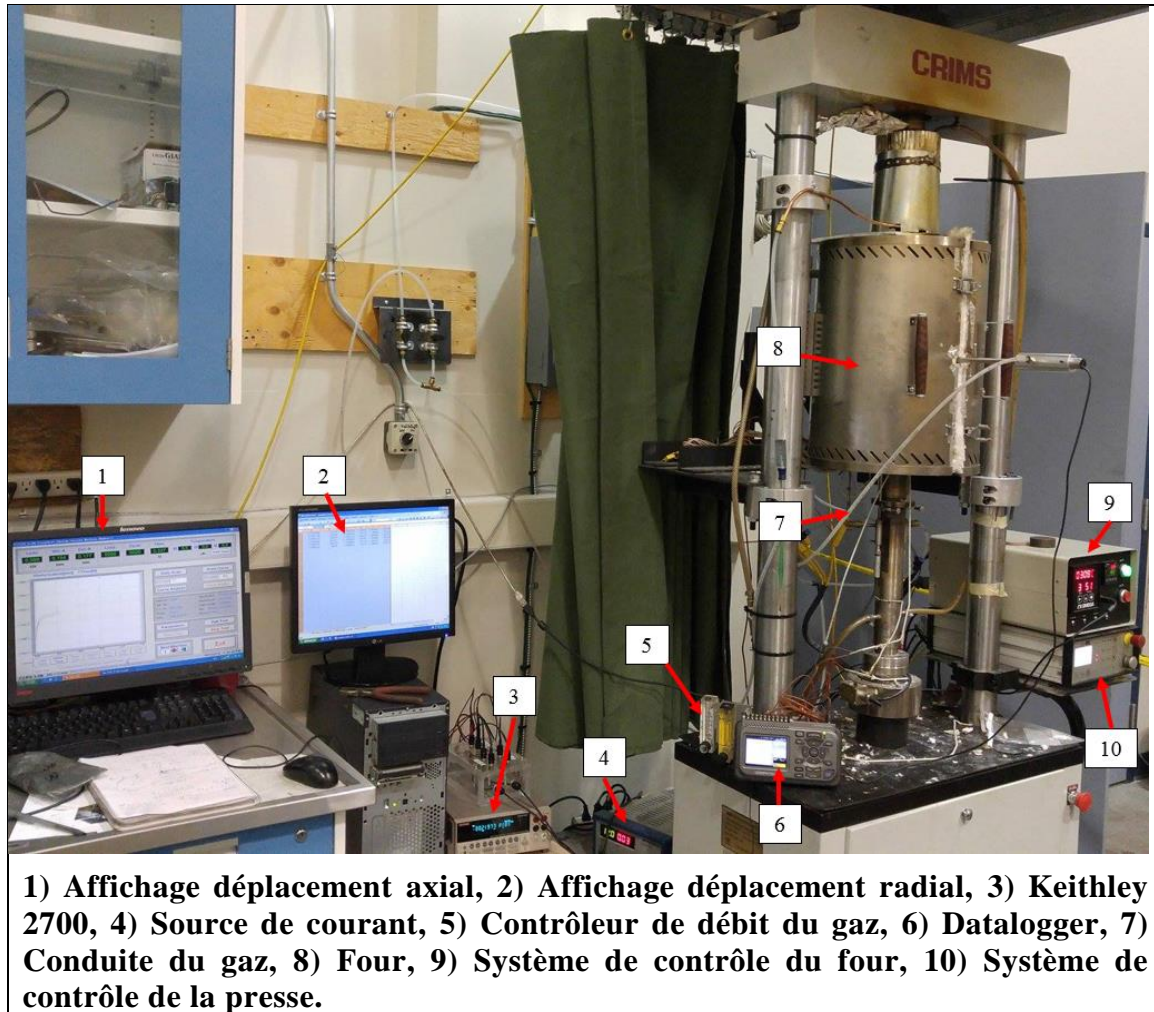
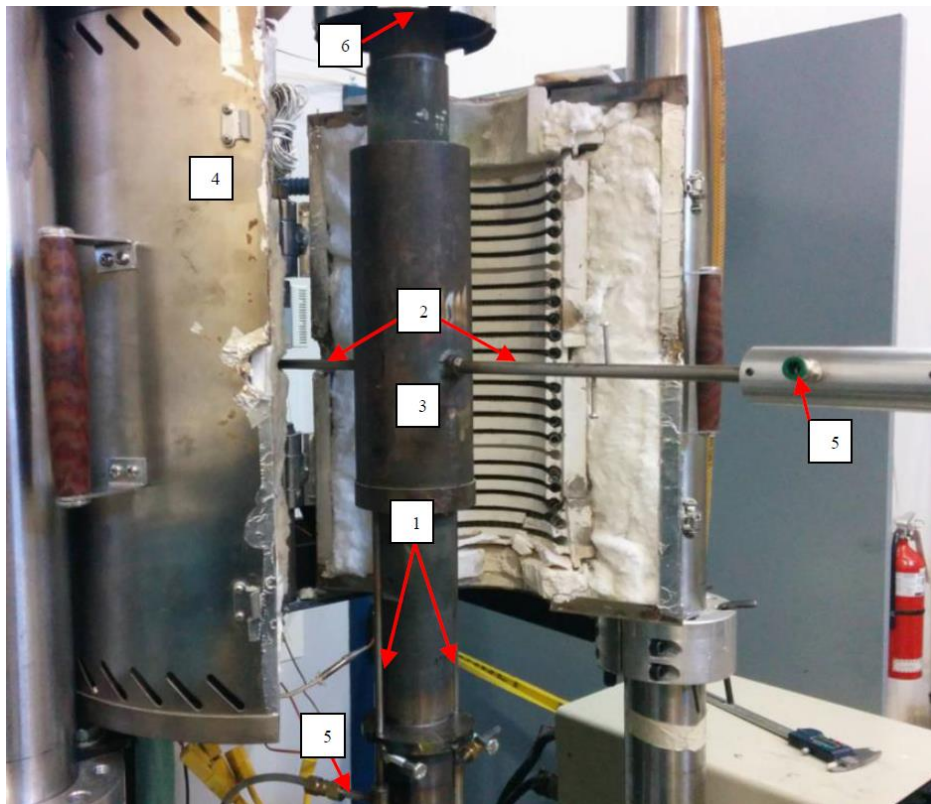


Figure 3.9 : Espace de travail de la presse CRIMS®.





**1) Tubes portant les LVDT axiaux, 2) Tubes portant les LVDT radiaux, 3) Cylindre d'isolation thermique, 4) Four, 5) Entrée du gaz inerte, 6) Système de captation des volatiles.**

Figure 3.10 : Presse CRIMS modifiée.

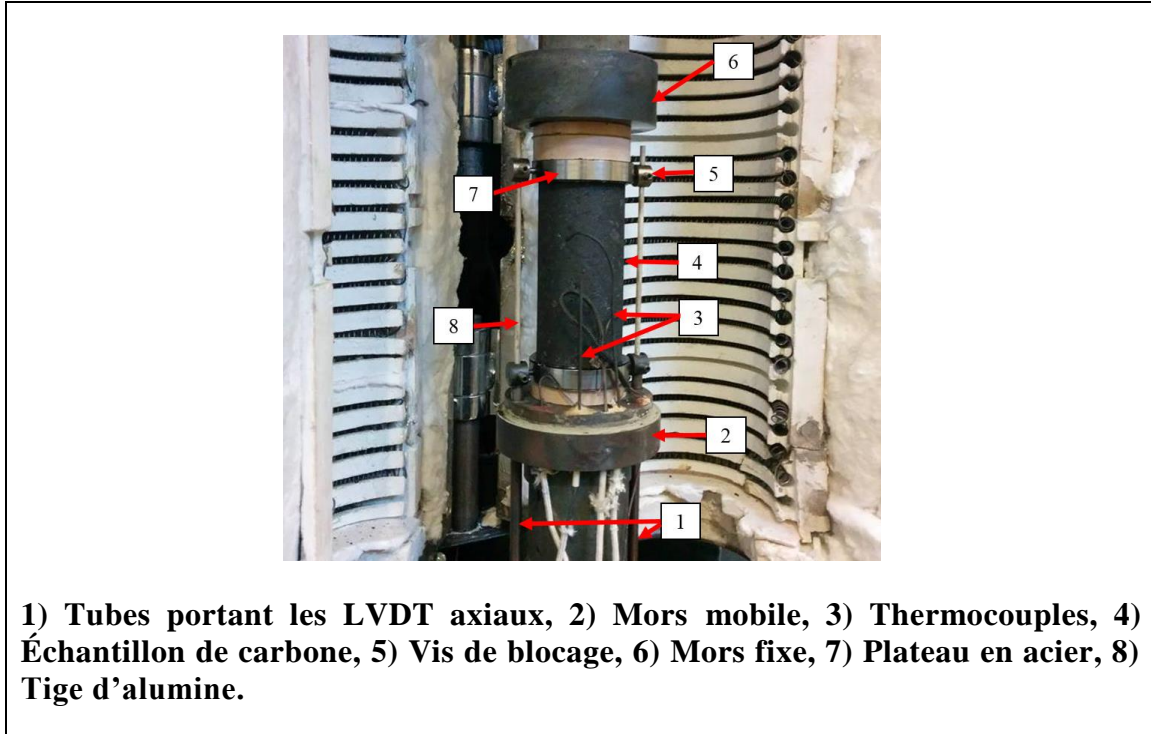


Figure 3.11: Montage pour mesure du déplacement axial.

Lors de l'essai de compression uniaxiale, la lecture du déplacement radial se voit entachée d'une erreur provoquée par le déplacement vertical de l'échantillon. En effet, ledit déplacement vertical entraîne la pointe de lecture du déplacement vertical, générant ainsi un angle entre l'orientation de la lecture et l'horizontale (figure 3.12). Afin d'assurer une compensation adéquate, une phase de calibration fut nécessaire. La figure 3.12 montre le montage de calibration qui a été développé. À cet effet, l'échantillon de carbone a été substitué par un cylindre creux en acier reposant sur un ressort qui permettra le déplacement de la pointe de lecture. La calibration est obtenue en associant l'évolution du déplacement radial au déplacement vertical de l'échantillon. De cette correction, la réponse réelle du déplacement radial est extraite de la réponse brute de l'échantillon lors de l'essai en enlevant la correction issue de la courbe de calibration

(figure 3.13). Afin de valider l'approche proposée, des essais ont été réalisés à TA sur des échantillons d'anode de carbone totalement cuits et les propriétés mécaniques mesurées furent tout à fait comparables à celles trouvées dans la littérature [52] ainsi qu'à celles obtenues par la presse Gleeble® (figure 3.14). D'autre part, des essais à haute température ont été réalisés sur des échantillons d'anode de carbone totalement cuits et encore une fois, les résultats obtenus étaient similaires à ceux trouvés avec la Gleeble® dans les mêmes conditions. (Peu importe l'hétérogénéité des anodes en carbone,  $E$  et  $\nu$  restent quasi stables pour les essais réalisés sur le carbone et ce, contrairement à  $S_{uc}$  qui peut varier selon la densité de l'échantillon par exemple).

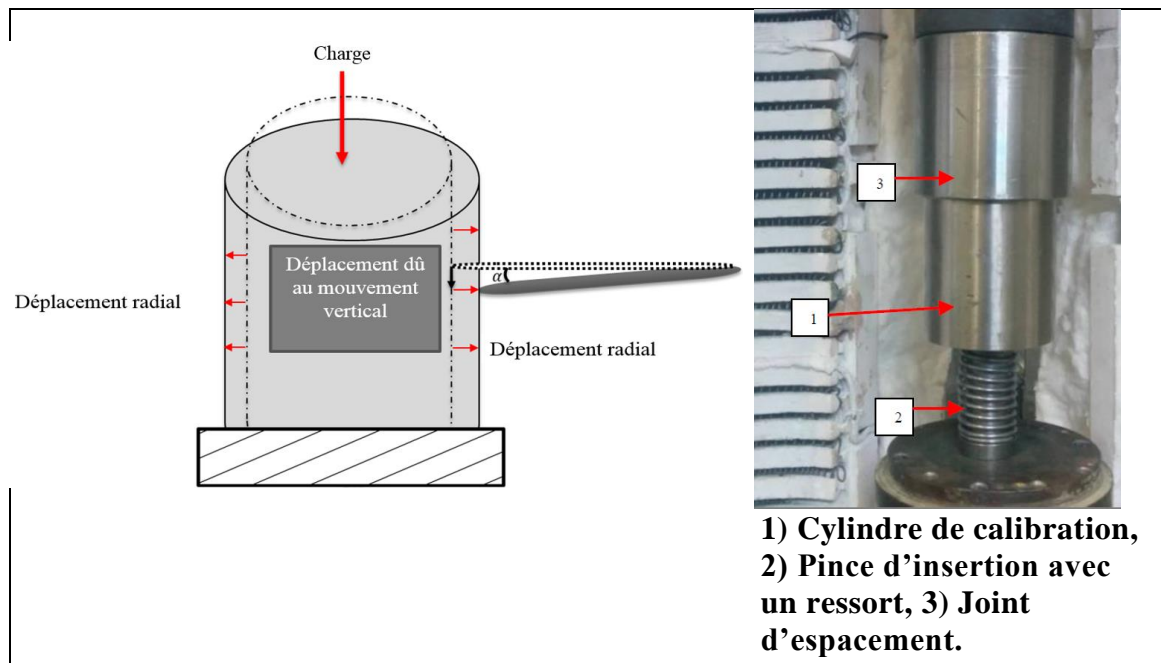


Figure 3.12 : À gauche : Réponse générée lors du mouvement vertical pour la mesure de la déformation radiale d'un essai de compression uniaxiale. À droite : Montage de calibration pour la déformation radiale.

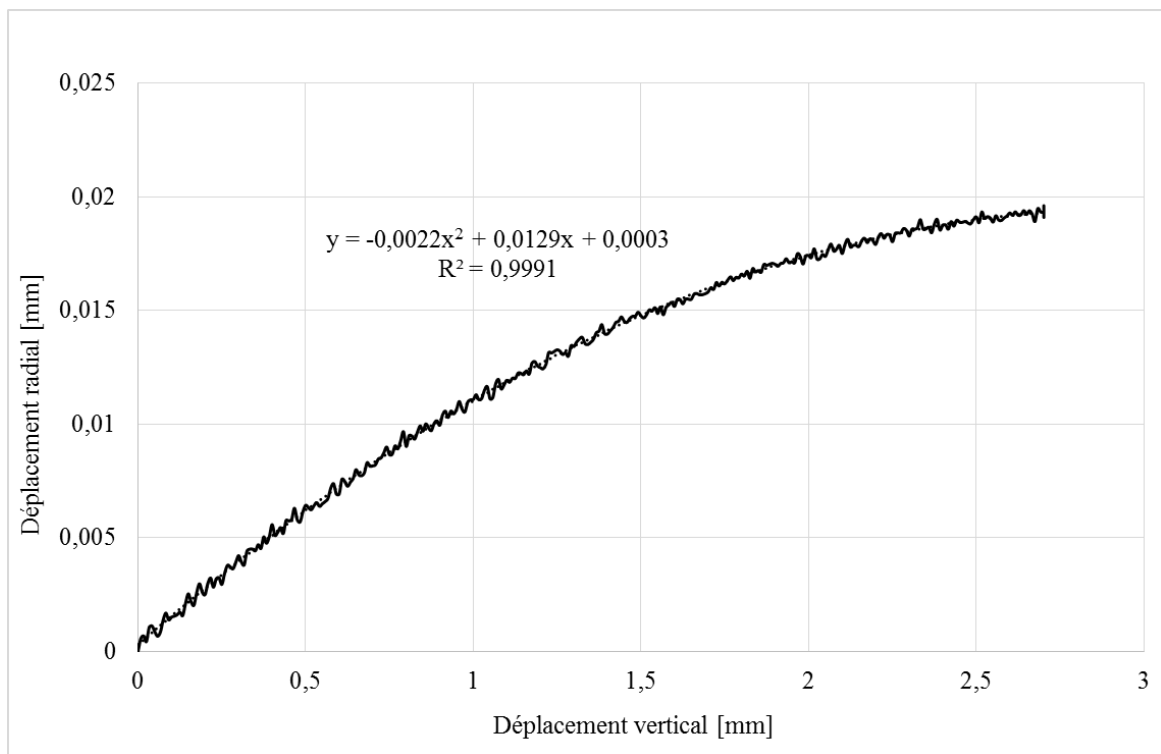


Figure 3.13 : Déplacement radial vs déplacement vertical.

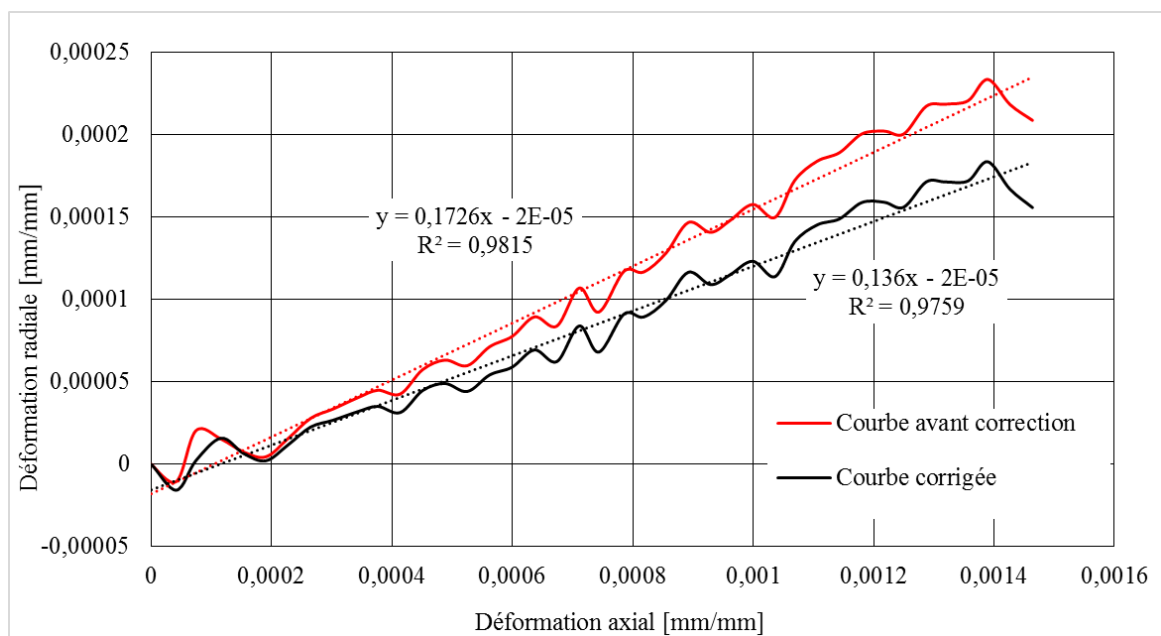


Figure 3.14 : Essai de compression uniaxiale à TA sur un échantillon d'anode de carbone totalement cuit ( $\nu = 0.13$ ).

Les essais de compression uniaxiale à haute température ont été réalisés sur la presse CRIMS<sup>®</sup> modifiée suivant la norme ASTM C469/C469M–10 standard [53]. Tout d'abord, deux séquences de chargement-déchargement à 20% de la résistance ultime à la compression ont été appliqués sur l'échantillon de carbone à TA et ce, pour les mêmes raisons expliquées précédemment pour les essais à TA. Ensuite, une montée en température a été appliquée jusqu'à atteindre la température cible voulue, ce qui est suivi d'une période de maintien afin d'avoir une distribution uniforme de la température dans l'échantillon. Finalement, la charge est augmentée sur l'échantillon de carbone jusqu'à sa rupture. Ainsi, pendant ce troisième chargement, les propriétés mécaniques  $E$ ,  $\nu$  et  $S_{uc}$  ont été mesurées à la température du test.

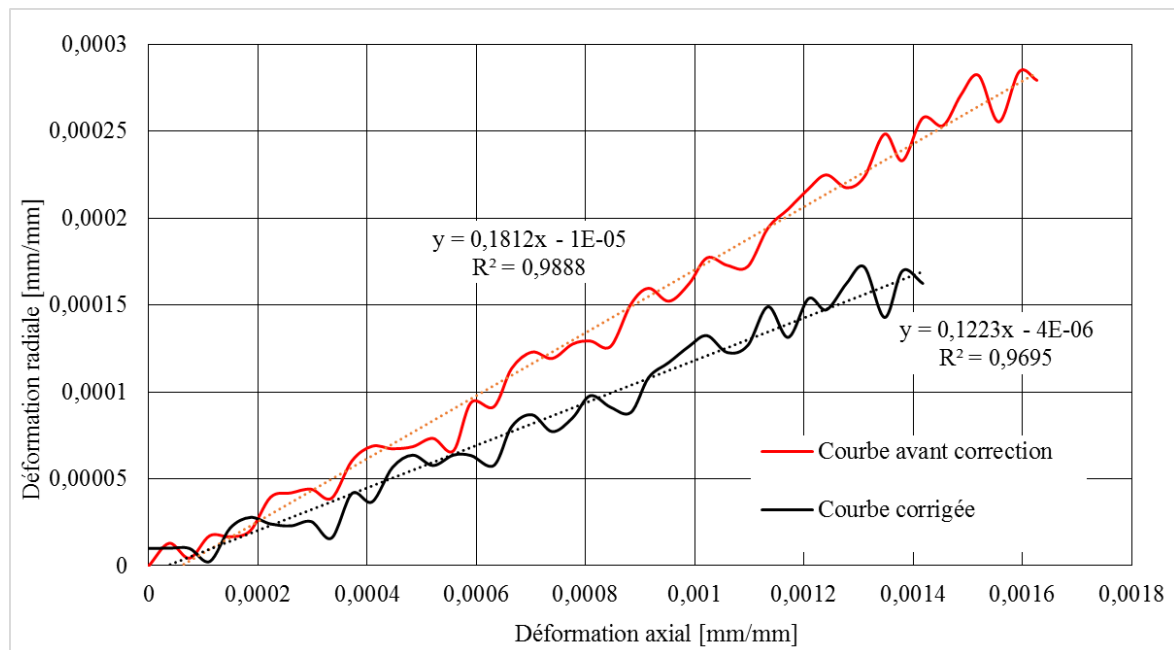


Figure 3.15 : Essai de compression uniaxiale à haute température sur un échantillon d'anode de carbone totalement cuit ( $\nu = 0.12$ ).

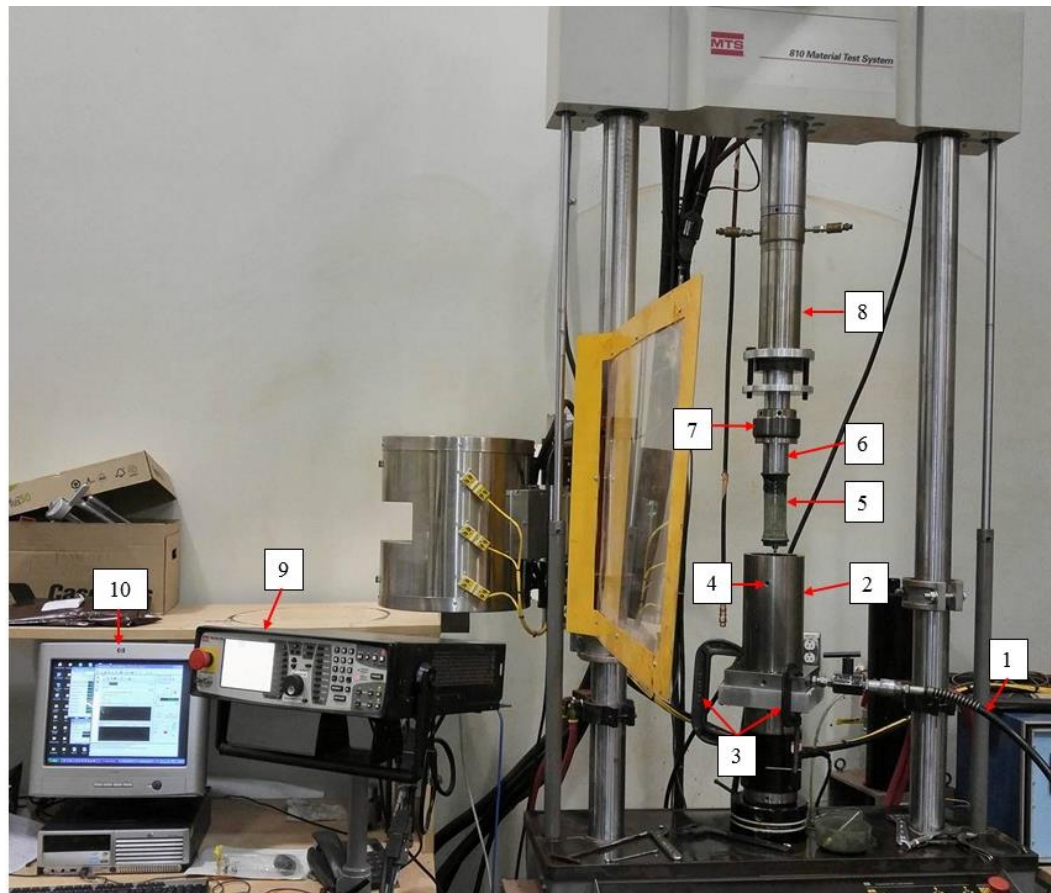
### **3.6.2 Essai de compression triaxiale**

Les essais de compression triaxiale ont été réalisés suivant différentes contraintes de confinement à l'aide d'une cellule triaxiale et ce, en se basant sur la norme ASTM D 2664 [54]. Cette cellule a été installée sur une Presse MTS 820<sup>®</sup> Material Test System disposant d'une capacité de chargement maximale de 250 kN (figure 3.16), et connectée à une unité hydraulique (figure 3.17) servant à l'application de la pression nécessaire au confinement. La cellule triaxiale a été fixée sur la presse MTS 820<sup>®</sup> à l'aide d'étaux et connectée à l'unité hydraulique d'une pression maximale de 10 000 psi (68 MPa). Pour chaque essai de compression triaxiale, la procédure employée fut comme suit :

- ❖ Installer l'échantillon d'anode de carbone à tester dans une gaine protectrice étanche pour empêcher sa contamination par l'huile.
- ❖ Fixer l'échantillon sur le piston de la cellule qui est préalablement installé au piston de la presse à l'aide d'un joint torique (en plus d'un disque qui a été fixé en bas de l'échantillon à l'aide d'un autre joint torique), et s'assurer d'avoir un bon alignement afin d'être au centre de la cellule triaxiale.
- ❖ Descendre le piston de la presse jusqu'à ce que l'échantillon touche le bas de la cellule, et appliquer une force d'environ 100N pour assurer un bon positionnement de tout l'ensemble.
- ❖ Bien serrer la vis de fermeture de la cellule afin d'avoir une bonne étanchéité.
- ❖ Remplir d'huile la cellule en s'assurant d'évacuer l'air qui est à l'intérieur.

- ❖ Maintenir en position le piston de la presse afin d'éviter toute déformation axiale de l'échantillon qui peut être générée par effet de Poisson lors de la montée en pression de confinement.
- ❖ Monter en pression à l'aide de l'unité hydraulique jusqu'à atteindre la valeur de la pression voulue. Une fois atteinte, la pression de confinement demeure constante jusqu'à la fin de l'essai de compression triaxiale.
- ❖ Augmenter progressivement la force axiale (obtenue au terme de confinement) jusqu'à la rupture.

Malheureusement, le montage disponible n'a pas permis d'avoir des essais de compression triaxiale à haute température. Dans ce contexte, une approche est présentée au chapitre 4 afin d'avoir une estimation de l'évolution de la résistance en compression à chaud en milieu confiné.



**1) Alimentation en huile, 2) Cellule triaxiale, 3) Étaux de fixation, 4) Drain d'évacuation, 5) Échantillon de carbone, 6) Piston de la cellule, 7) Vis de fermeture de la cellule, 8) Piston de la presse MTS 820®, 9) Unité de commande, 10) Ordinateur.**

Figure 3.16 : Montage pour les essais de compression triaxiale.





Figure 3.17 : Unité hydraulique.

### 3.6.3 Essai de fluage/recouvrance

Les essais de fluage en compression avec recouvrance ont également été réalisés à l'aide de la presse CRIMS<sup>®</sup>. Suivant la norme ASTM C512/C512M-15 [55], les niveaux de contraintes à appliquer pour les essais de fluage ont été fixés à 20%, 30% et 40% des valeurs de la résistance ultime à la compression, valeurs qui ont été identifiées précédemment à partir des essais de compression uniaxiale à chaud. Ces niveaux de contraintes ont été appliqués seulement pour les échantillons qui ont été testés entre 25°C et 300°C. Afin d'identifier le fluage du matériau pour des niveaux de cuisson supérieurs, les échantillons partiellement cuits à 400°C et plus se sont vus appliquer des contraintes différentes pour des raisons qui vont être expliquées ultérieurement.

La procédure de l'essai de fluage consiste à installer l'échantillon dans la presse, avec les LVDT axiaux et radiaux, et ensuite de procéder à la montée en température

jusqu'au niveau voulu. Une fois la température de l'essai atteinte, cette dernière est maintenue pendant un certain temps afin d'assurer une distribution uniforme dans l'échantillon. Par la suite, un chargement est appliqué sur l'échantillon jusqu'à atteindre la valeur cible définie selon la valeur de  $S_{uc}$  (cette valeur ne doit pas dépasser 40% de  $S_{uc}$  [55]). Une fois cette valeur atteinte, la presse est verrouillée mécaniquement de telle sorte que la charge appliquée demeure constante. Les déformations axiale et radiale sont par la suite mesurées dans le temps. Une fois le fluage secondaire observé suite à une stabilisation de la pente, la contrainte appliquée est enlevée afin d'observer le phénomène de recouvrance. Trois répétitions ont été réalisées pour chaque condition donnée. Le tableau 3.2 montre les différentes contraintes appliquées suivant le niveau de cuisson lors des essais de fluage avec recouvrance.

Tableau 3.2 : Tableau des essais de fluage/recouvrance.

Température de cuisson [°C]	Contrainte appliquée [% de $S_{uc}$ ]
25 (Anode crue)	20, 30, 40
120 (Anode crue)	20, 30, 40
180 (Anode crue)	20, 30, 40
230 (Anode crue)	20, 30, 40
300	20, 30, 40
400	Identifiées au chapitre 4
500	Identifiées au chapitre 4
600	Identifiées au chapitre 4
1200 (Anode cuite)	Identifiées au chapitre 4

### **3.7 Sommaire**

Ce chapitre a permis de mettre en évidence les différents montages ainsi que la procédure expérimentale employée pour la caractérisation thermo-chimio-mécanique de l'anode de carbone pendant la phase de cuisson et ce, via des essais à TA et à haute température sur des échantillons de carbone allant de l'état cru à l'état cuit. L'ensemble des essais réalisés et résultats obtenus sont présentés et discutés au chapitre 4.

## Chapitre 4

### Résultats et discussions

#### 4.1 Introduction

Durant le processus de cuisson des anodes de carbone, le matériau subit de nombreuses transformations de sa structure et ce, en raison de l'interaction entre les phénomènes mécaniques et thermochimiques. En effet, l'anode qui est initialement formée de mégots provenant des rejets d'anciennes anodes, de coke de pétrole préalablement calciné et du brai, subit d'importantes transformations chimiques en dégageant différentes substances volatiles lors de la montée en température. Le dégagement desdits volatiles peut être observé généralement par la perte de masse à partir d'environ 250°C, jusqu'à la fin de la cuisson (environ 1200°C). Durant la cuisson, le brai, considéré comme la phase liante reliant les agrégats, subit un changement de phase caractérisé par une diminution de sa viscosité en fonction de la température avant la cokéfaction. Ce changement de viscosité aura nécessairement un impact direct sur l'évolution des propriétés mécaniques de l'anode de carbone.

Dans ce chapitre, une analyse détaillée des résultats obtenus des essais de la caractérisation des comportements thermochimique, thermomécanique et en fluage est réalisée sur des échantillons de carbone cuits à différentes températures.

## **4.2 Caractérisation du comportement thermochimique**

Durant la cuisson, les blocs d'anodes subissent un ensemble de déformations résultant des phénomènes d'origine thermique et chimique. Dans cette section, les résultats obtenus d'essais de dilatométrie sur toute la plage de température du processus de cuisson sont analysés en détail. De plus, une attention particulière est portée sur les résultats de thermogravimétrie obtenus sur des échantillons précuits afin de caractériser le potentiel d'évolution des réactions thermochimiques en deçà de la température de cuisson. D'ailleurs ces derniers essais ont permis d'identifier clairement la température à laquelle les essais à chaud devront être réalisés.

### **4.2.1 Essais de dilatométrie**

Tel qu'illustré à la figure 4.1, la déformation issue de la dilatation libre de l'échantillon d'anode cru a été mesurée en fonction de la température. Un ensemble de trois essais a été réalisé, avec une montée en température allant de la TA jusqu'à 1100°C, avec un taux de chauffe de 11°C/h.

Tout d'abord, la dilatation débute par la libération des contraintes résiduelles dues au processus de formage et de refroidissement, et par le changement de phase du brai qui commence à environ 120°C, suivie par la libération des matières volatiles emprisonnées à partir d'environ 250°C. En effet, les gaz se trouvant à l'intérieur de l'échantillon d'anode engendrent des pressions avec la montée en température, causant ainsi la dilatation. L'échantillon de carbone continue sa dilatation avec la montée en température jusqu'à environ 480°C.

Par la suite, l'augmentation de la température conduit à une contraction pouvant expliquer la cokéfaction du brai qui se solidifie ainsi que par la réduction de la pression interne produite par le dégagement des matières volatiles. La hauteur de l'échantillon est donc réduite après la libération des matières volatiles et débute la transition vers une matrice solide. La libération majeure des produits volatiles continue jusqu'à environ 600°C. Cette étape est suivie par la pyrolyse et la graphitisation de l'anode, aussi par le dégagement des volatiles légers de faibles quantités qui diminuent progressivement jusqu'à la fin de la cuisson.

Cette déformation totale  $\varepsilon_{tot}$  issue de la dilatation libre de l'échantillon (figure 4.1) est composée de plusieurs mécanismes dont ceux dus au changement de phase du brai, aux mécanismes chimiques ainsi qu'à la graphitisation (équation 4.1).

$$\varepsilon_{tot} = \varepsilon_{th} + \varepsilon_{ch} \quad (4.1)$$

La première déformation est une déformation d'origine thermique  $\varepsilon_{th}$  qui se produit lors de la montée ainsi que lors de la descente en température et qui est due à la dilatation des différents composants, tandis que la deuxième est une déformation irréversible d'origine chimique  $\varepsilon_{ch}$ , essentiellement due au dégagement des volatiles et à la cuisson du brai. On notera également une déformation due au changement de phase du brai en début de la montée en température ainsi qu'une autre lors de la graphitisation de l'anode. Cependant, pour des fins d'analyse, ces deux derniers mécanismes ont été conservés dans la composante chimique de la déformation.

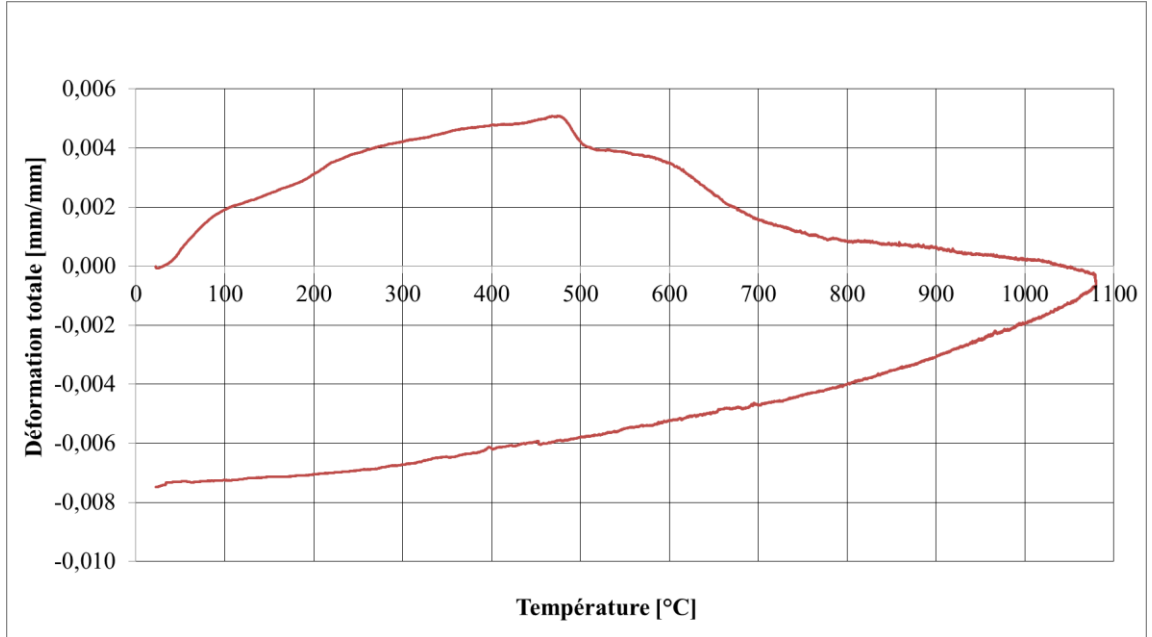


Figure 4.1 : Déformation totale mesurée lors d'un essai de dilatométrie avec un taux de chauffe de 11°C/h sur un échantillon d'anode de carbone cru.

### *Évolution de la déformation thermique*

Au terme de la cuisson, l'échantillon aura subi la quasi-totalité des transformations chimiques dans la plage de température d'intérêt. Une fois refroidie, l'échantillon est soumis à une nouvelle montée en température et ce, afin d'observer seulement l'évolution de la déformation d'origine thermique  $\varepsilon_{th}$  (telle qu'expliquée au chapitre 3). La déformation mesurée est donc due uniquement à la dilatation de l'anode de carbone cuite. La figure 4.2 montre la déformation thermique  $\varepsilon_{th}$  en fonction de la variation de la température  $\Delta T$ , ce qui permet d'extraire le coefficient d'expansion thermique  $\alpha$ , obtenu à partir de la pente de la droite selon l'expression :

$$\varepsilon_{th} = \alpha \Delta T \quad (4.2)$$

avec :

$$\alpha = \frac{1}{l} \frac{\Delta l}{\Delta T} \quad (4.3)$$

et  $\Delta l$ , représentant le changement de longueur de l'échantillon. Conséquent des résultats obtenus, le coefficient de dilatation thermique est de l'ordre de  $5.26 \times 10^{-6} \pm 3.5 \times 10^{-8} [^{\circ}\text{C}^{-1}]$ . Cette valeur est voisine à celle qu'on peut trouver dans la littérature qui est de l'ordre de  $5.19 \times 10^{-6} [^{\circ}\text{C}^{-1}]$  [56].

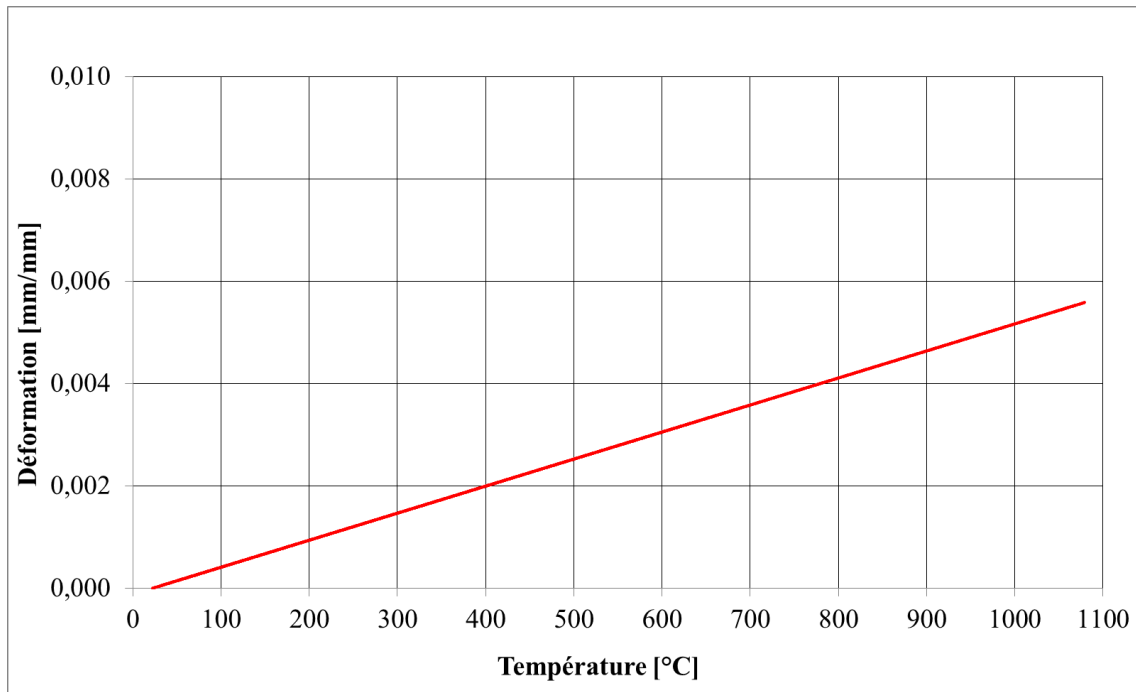


Figure 4.2 : Déformation thermique mesurée lors d'un essai de dilatométrie avec un taux de chauffe de  $11^{\circ}\text{C}/\text{h}$  sur un échantillon d'anode de carbone cuit.



### *Évolution de la déformation chimique*

La déformation d'origine chimique est une déformation permanente irréversible. Cette dernière est obtenue en soustrayant la déformation thermique de la déformation totale telle que :

$$\varepsilon_{ch} = \varepsilon_{tot} - \varepsilon_{th} \quad (4.4)$$

La figure 4.3 illustre la déformation chimique extraite de la différence entre la déformation totale et thermique.

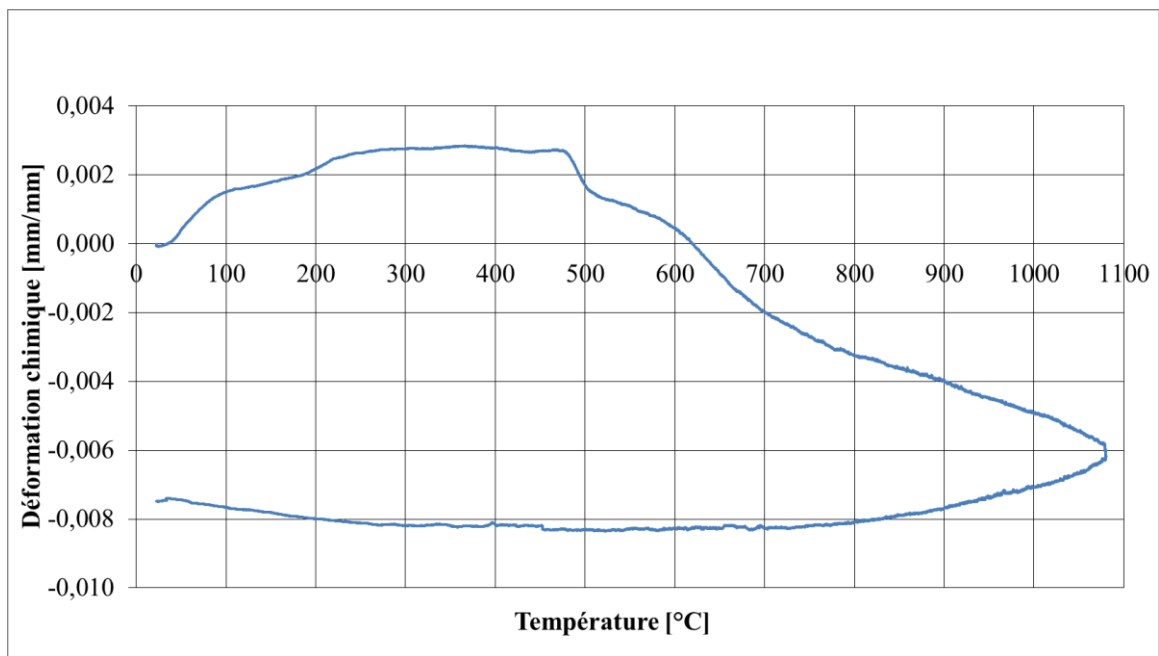


Figure 4.3 : Déformation chimique calculée lors d'un essai de dilatométrie avec un taux de chauffe de 11°C/h sur un échantillon d'anode de carbone cru.

#### **4.2.2 Essai de thermogravimétrie**

Après la cuisson partielle des échantillons d'anode de carbone, et une fois refroidis, un essai de thermogravimétrie a été réalisé afin de vérifier le niveau de

réactivité de l'échantillon au voisinage de la température de cuisson. La figure 4.4 illustre un exemple typique de la perte de masse d'un échantillon partiellement cuit jusqu'à 400°C. Les résultats obtenus montrent que la perte de masse se poursuit à des températures de l'ordre de 260°C à 270°C et ce, même si l'échantillon était déjà cuit à 400°C. En effet, le dégagement des volatiles a repris aux environs de 300°C, avec quelques perturbations à partir de 260°C-270°C. Ces dernières observations montrent que l'échantillon est susceptible de subir de nouvelles transformations chimiques à des températures bien inférieures à leur température de cuisson et ce, tant qu'il n'est pas totalement cuit. Ainsi, afin d'éviter la poursuite de la cuisson pendant les essais, il a été convenu de réaliser l'ensemble des essais sur les échantillons partiellement cuits à une température de test de 250°C. Cette dernière est donc une température de sécurité pour les essais à haute température concernant les échantillons cuits à 300°C et plus. D'après la littérature, Le dégagement des volatiles se poursuit jusqu'à la fin de cuisson, avec un pourcentage très élevé jusqu'à 700°C environ (figure 4.5) [37], donc il a été prévisible de supposer la reprise du dégagement des volatiles à partir de 250°C-300°C pour les autres échantillons partiellement cuits à 500°C et 600°C. Cependant, afin d'avoir la confirmation qu'on est à la bonne température, il a été préférable de réaliser plus d'essais sur des échantillons partiellement cuits à des niveaux de cuisson supérieurs à 400°C. Ceci est recommandé pour des travaux futurs.

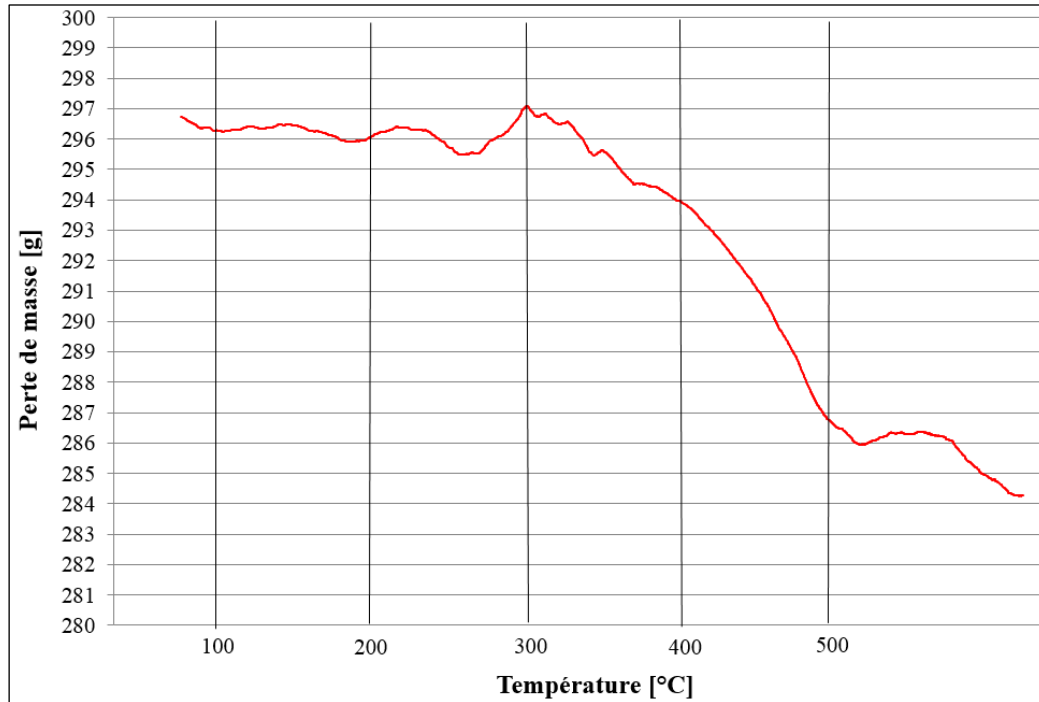


Figure 4.4 : Essai de thermogravimétrie sur un échantillon d'anode de carbone partiellement cuit jusqu'à 400°C.

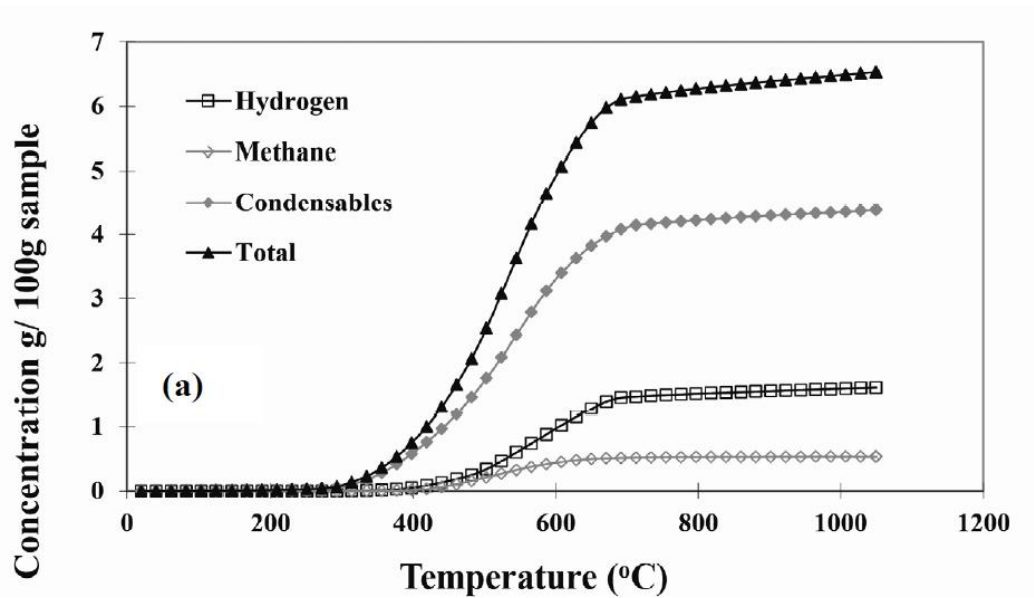


Figure 4.5 : Concentrations cumulatives des volatiles dégagés d'un échantillon d'anode en carbone pendant la cuisson [37].

Conséquent de l'évolution de l'état du matériau avant le début de la perte de masse (réactions chimiques), il fut nécessaire d'identifier trois autres températures critiques correspondant spécifiquement à la température de ramollissement du brai (120°C), à la température voisine de la température de vibrocompaction des anodes (180°C) ainsi qu'à la température qui précède ladite perte de masse (230°C). Le tableau 4.1 montre les différentes températures critiques utilisées lors des essais réalisés sur des échantillons d'anode de carbone crus, partiellement cuits (300°C, 400°C, 500°C, 600°C) et totalement cuits.

Tableau 4.1 : Tableau des essais réalisés à différentes températures suivant le niveau de cuisson.

Essais à TA		Essais à chaud	
Température de cuisson [°C]		Température de cuisson [°C]	Température des essais [°C]
25 (Anode crue)		120 (Anode crue)	120
300		180 (Anode crue)	180
400		230 (Anode crue)	230
500		300	250
600		400	250
1200 (Anode cuite)		500	250
		600	250
		1200 (Anode cuite)	250

### **4.3 Caractérisation du comportement thermomécanique**

La détermination des propriétés thermomécaniques des matériaux granulaires hétérogènes représente, encore aujourd'hui, un grand défi d'autant plus lorsqu'il s'agit de la mesure de leurs propriétés à hautes températures.

Dans cette section, une caractérisation du comportement élastique ainsi que de l'enveloppe de rupture est réalisée à partir des essais de compression uniaxiale et de compression triaxiale sur des échantillons d'anode de carbone crus et cuits à différents niveaux de cuisson. Concernant les essais de compression uniaxiale, ces derniers sont réalisés à TA et à haute température pour mettre en évidence la différence de comportement.

#### **4.3.1 Compression uniaxiale**

##### **4.3.1.1 Essais à TA**

Les essais à TA réalisés à l'aide de la presse Gleeble<sup>®</sup> ont permis l'identification du module de Young ( $E$ ), du coefficient de Poisson ( $\nu$ ) et de la résistance en compression uniaxiale ( $S_{uc}$ ). Les figures 4.7 et 4.8 montrent des exemples typiques de résultats d'essai de compression uniaxiale (avec 3 répétitions) à TA réalisés sur des échantillons totalement cuits.

Les résultats obtenus pour la résistance ultime à la compression (figure 4.7 et annexes : A.1, A.3, A.5, A.7 et A.9) montrent une valeur quasi-stable peu importe la température de cuisson avec une moyenne d'environ 47 MPa. Il faut noter que cette

propriété a une forte dépendance à la densité de l'échantillon testé ; montrant une augmentation de sa valeur avec l'augmentation de la densité (figure 4.6). De plus, les résultats obtenus présentent un comportement quasi fragile avant la rupture (figure 4.7) et ce, peu importe le niveau de cuisson (Annexes A.1 à A.10).

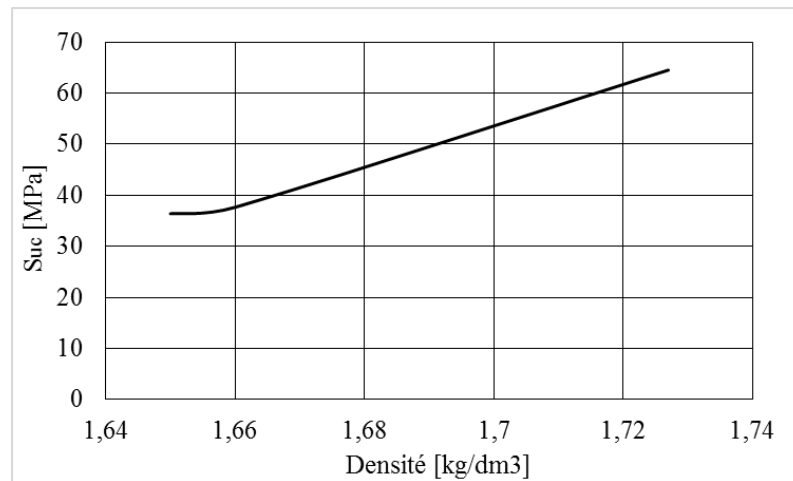


Figure 4.6 : Variation de  $S_{uc}$  déterminée à TA en fonction de la densité des échantillons d'anode de carbone crus.

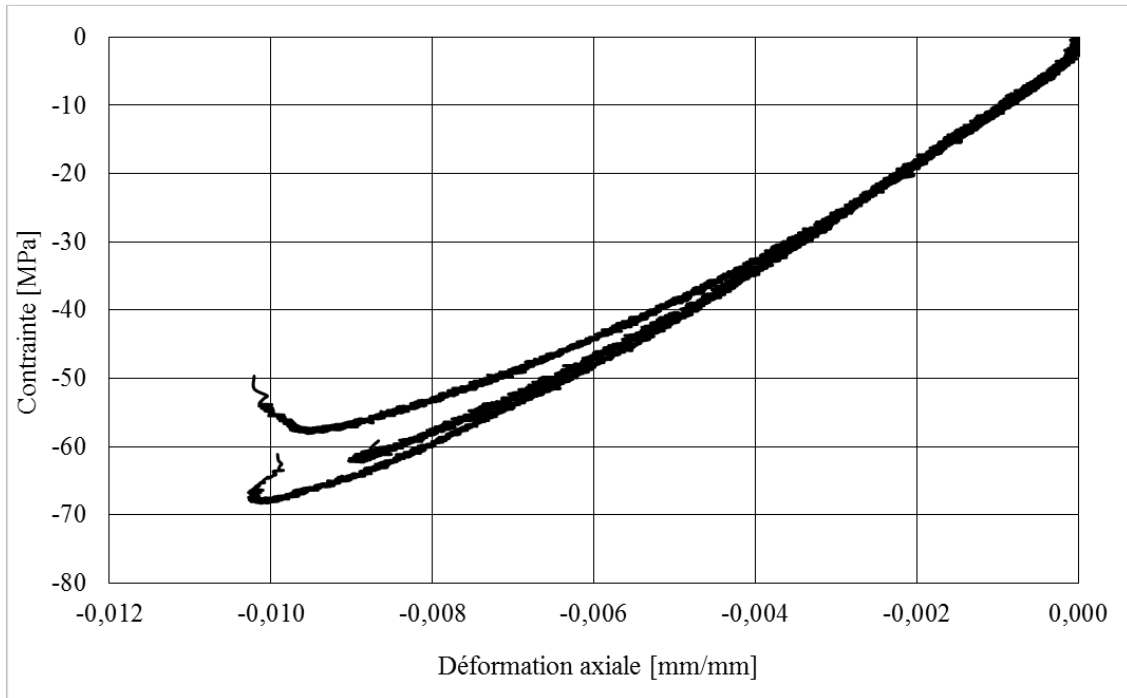


Figure 4.7 : Courbes contrainte vs déformation axiale tracées à partir des essais de compression uniaxiale à TA sur des échantillons d'anode de carbone totalement cuits.

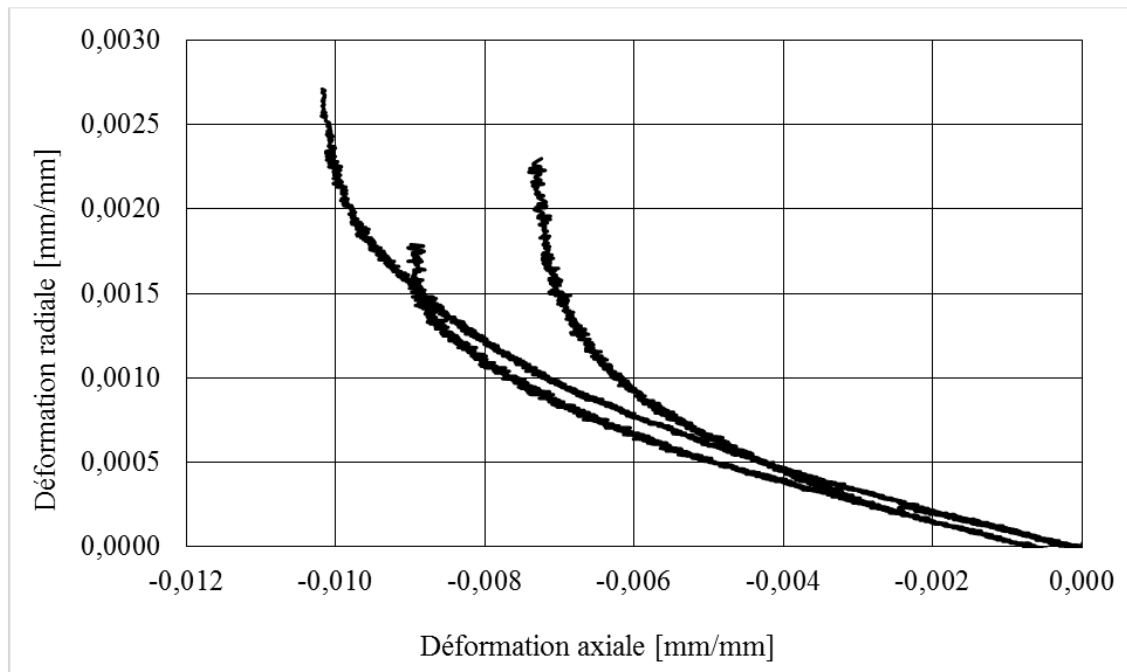


Figure 4.8 : Courbes déformation radiale vs déformation axiale tracées à partir des essais de compression uniaxiale à TA sur des échantillons d'anode de carbone totalement cuits.

Cependant, en ce qui concerne le module d'Young ( $E$ ), les résultats obtenus montrent une diminution de sa valeur allant d'environ 11 GPa ( $\pm 1.32$  GPa) pour un échantillon cru à environ 7 GPa ( $\pm 0.16$  GPa) pour un échantillon totalement cuit dont il devient moins rigide. La figure 4.9 montre les résultats obtenus de 3 différents essais par température ainsi que la valeur moyenne. Cette tendance s'explique par la transformation du brai lors du changement de phase, suite à diverses transformations chimiques, jusqu'à sa cokéfaction en fin de cuisson.

Pour les mêmes raisons, les résultats obtenus pour le coefficient de Poisson ( $\nu$ ) présentent la même tendance, montrant une diminution allant de 0.22 ( $\pm 0.005$ ) pour un échantillon d'anode de carbone cru à 0.12 ( $\pm 0.018$ ) pour un échantillon totalement cuit. La figure 4.10 montre l'évolution du coefficient de Poisson incluant l'ensemble des essais réalisés ainsi que la valeur moyenne ( $E$  et  $\nu$  à TA obtenus à l'état cuit sont comparables à celles qu'on peut trouver dans la littérature [52]).

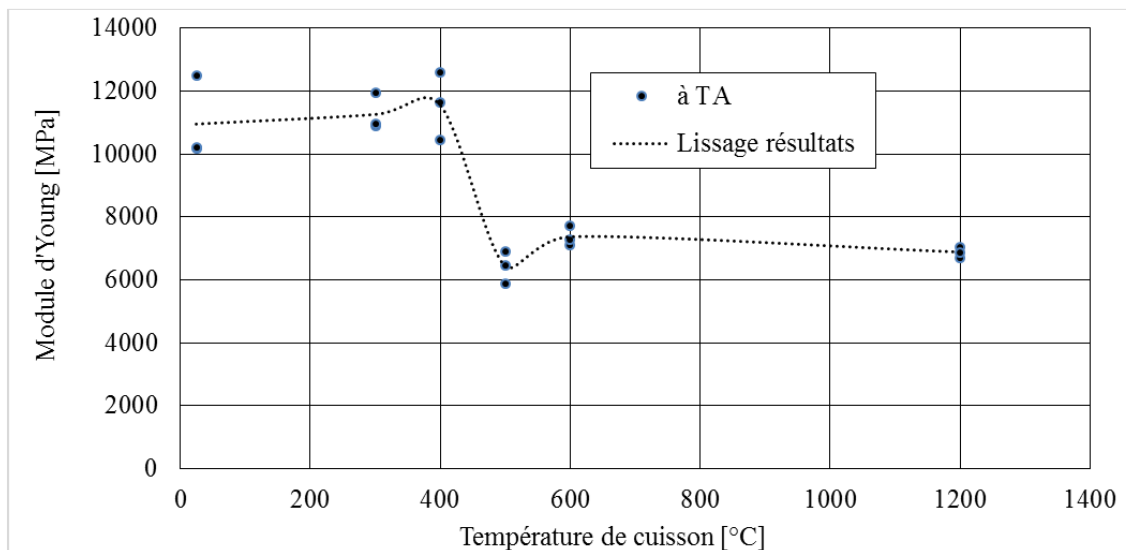


Figure 4.9 : Variation du module d'Young, déterminé à TA, de l'anode de carbone en fonction de la température de cuisson.



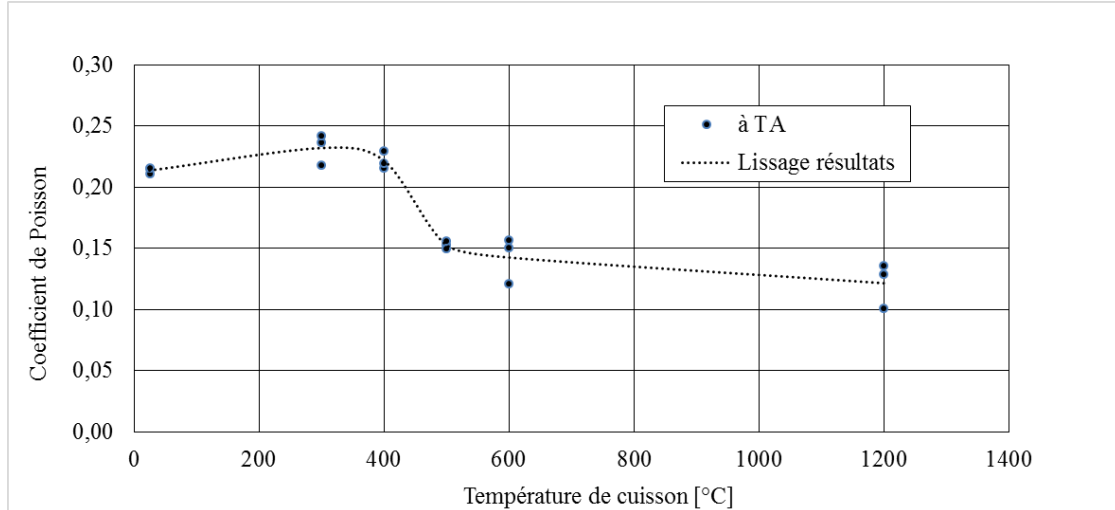


Figure 4.10 : Variation du coefficient de Poisson, déterminé à TA, de l'anode de carbone en fonction de la température de cuisson.

#### 4.3.1.2 Essais à chaud

Avant même d'aborder cette section, il était aisé de s'imaginer que les propriétés mécaniques d'échantillons soumis à des températures avoisinant la plage de température correspondant à la phase de ramollissement du brai jusqu'au début de la perte de masse, devraient être fortement influencés par la température; ce qui n'est pas le cas en observant les résultats obtenus des essais à TA. En effet, une diminution de viscosité occasionnée par la montée en température ne peut qu'affecter de façon significative les propriétés élastiques du matériau. Afin de décrire plus fidèlement l'évolution desdites propriétés, il importe donc de réaliser les essais à une température représentative de l'état de cuisson.

Tel que montré aux figures 4.11, 4.12 et 4.13, les résultats obtenus des essais à chaud sur des échantillons cuits à des températures de 500°C et plus montrent un comportement similaire à celui obtenu des essais à TA. Cependant, les résultats obtenus

pour les essais à chaud sur des échantillons cuits à des températures de 400°C et moins montrent un comportement très différent de celui obtenu des essais à TA.

Tel qu'illustré à la figure 4.11, les valeurs de  $S_{uc}$  diminuent considérablement d'une valeur moyenne de 47 MPa pour un échantillon cru testé à TA à 0.514 MPa pour un échantillon cru testé à 120°C, soit la température de ramollissement du brai. Au-delà de cette température, les valeurs de  $S_{uc}$  continuent de diminuer jusqu'à 230°C pour atteindre une valeur minimale moyenne de 0.136 MPa.

Tel que montré à la figure 4.12, la même tendance est observée pour  $E$  avec une diminution de l'ordre de 11 GPa pour un échantillon cru pour atteindre des valeurs très faibles de l'ordre de 0.037 GPa pour les températures de cuisson situées entre 120°C et 400°C. À partir de 400°C, le brai commence à développer une certaine résistance due à sa cokéfaction qui continue jusqu'à environ 700°C, ce qui contribue à l'augmentation importante des valeurs de  $S_{uc}$  et  $E$  ainsi qu'à leur stabilisation à partir de 500°C, jusqu'à la fin de la cuisson à environ 1200°C.

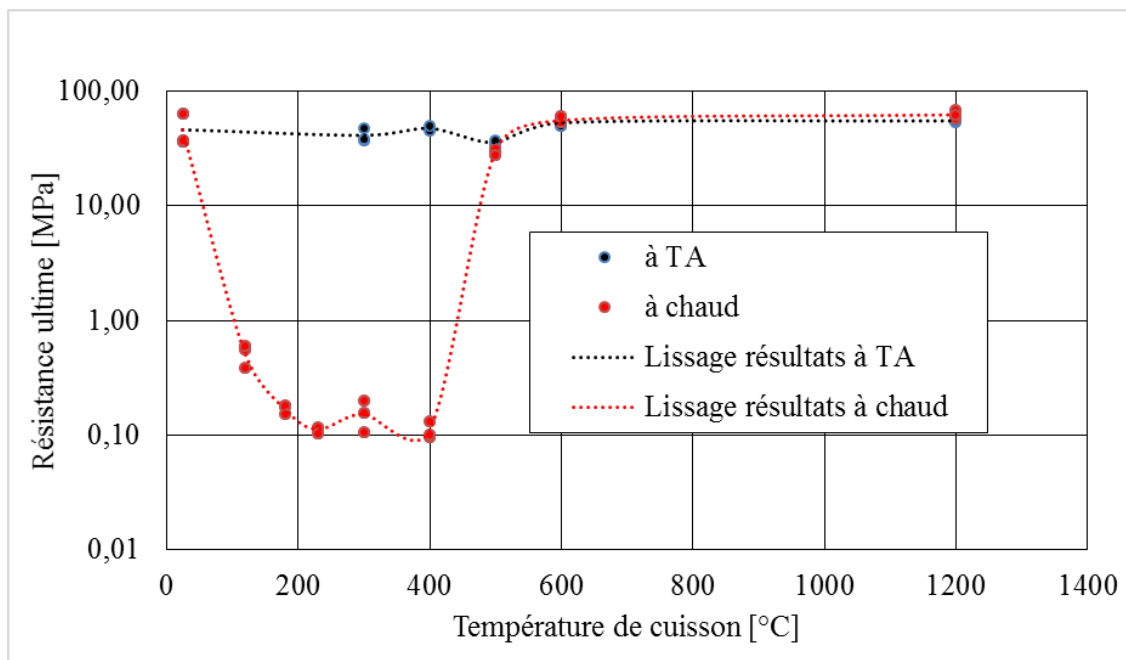


Figure 4.11 : Variation de la résistance ultime à la compression uniaxiale, mesurée à haute température, de l'anode de carbone en fonction de la température de cuisson.

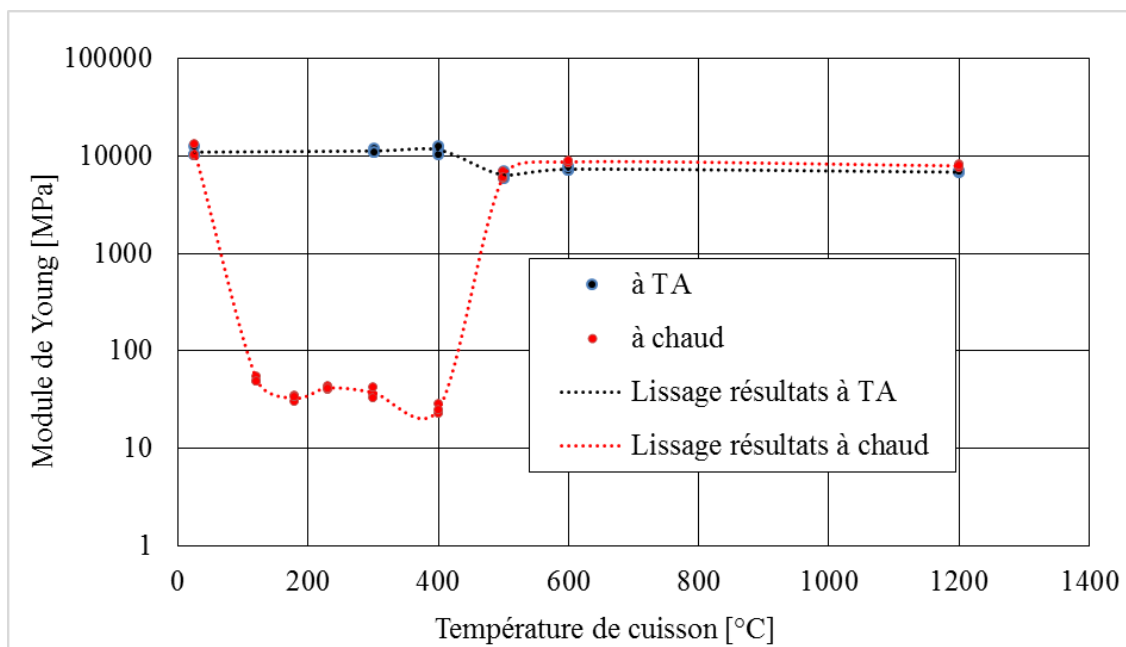


Figure 4.12 : Variation du module d'Young, déterminé à haute température, de l'anode de carbone en fonction de la température de cuisson.

Quoiqu'évoluant selon la même tendance que la résistance ultime en compression et le module d'Young, la détermination du coefficient de Poisson d'un tel matériau dans la plage de température correspondante à sa chute de viscosité représente un défi de taille et ce, en raison de la faible amplitude des déplacements mesurés. Tel que montrée à la figure 4.13, l'évolution du coefficient de Poisson montre une tendance identique à celle obtenue des essais à TA sur des échantillons cuits à 500°C et plus.

En contrepartie, la plage de température comprise entre 120°C et 500°C présente de fortes variations. À 120°C, la valeur de  $\nu$  atteint une valeur moyenne de 0.238 et augmente progressivement vers la valeur irréaliste de 0.589 à 180°C, température à laquelle le matériau atteint une consistance très molle. En effet la chute de viscosité du matériau l'amène à s'écouler progressivement et ce, sans l'ajout de force supplémentaire, ce qui explique les valeurs de  $\nu$  supérieures 0.5. L'exercice montre cependant que le matériau se comporte comme un fluide incompressible au voisinage de 180°C.

Pour des températures de cuisson se situant entre 230°C et 400°C, le coefficient de Poisson diminue d'une manière significative tout en demeurant relativement élevé avec une valeur moyenne de 0.414. À partir de 500°C,  $\nu$  se stabilise progressivement avec la cokéfaction du brai pour atteindre une valeur moyenne de 0.17 entre 500°C et 600°C et une valeur de 0.12 en fin de cuisson.

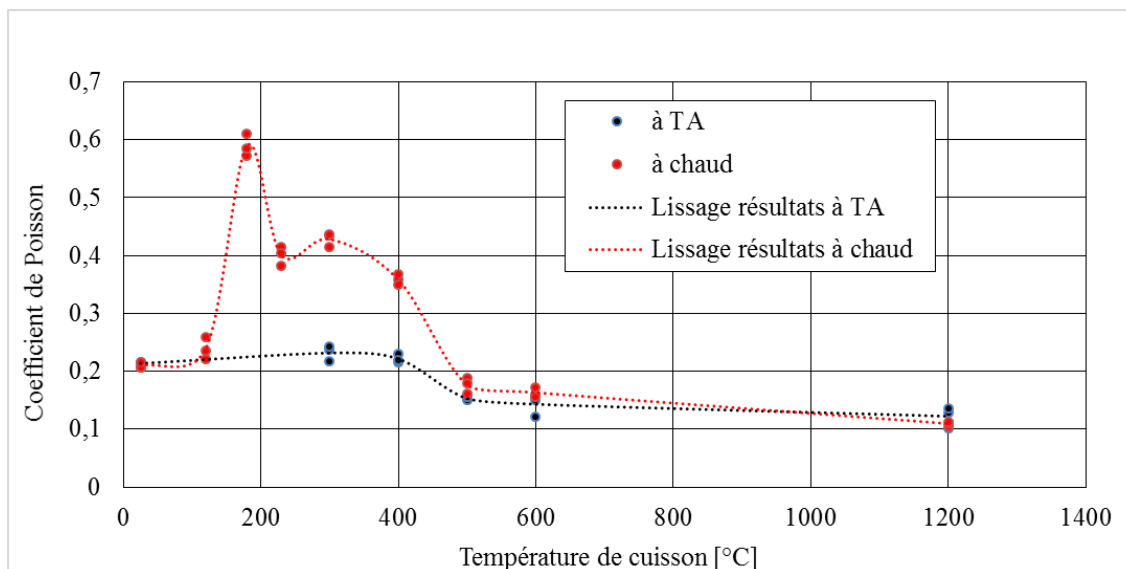


Figure 4.13: Variation du coefficient de Poisson, déterminé à haute température, de l'anode de carbone en fonction de la température de cuisson.

Il importe de noter que contrairement aux essais réalisés à TA, la rupture des échantillons de carbone testés à haute température s'est présentée de façon très différente. En effet, et tel que montré aux figures 4.14, 4.15 et 4.16, l'échantillon ne s'est pas fracturé d'une manière soudaine (quasi fragile) mais plutôt de façon ductile. Donc, il y a eu une chute graduelle de la contrainte axiale, accompagnée par un adoucissement caractérisé par une dégradation progressive du matériau, suite à la propagation des microfissures. Le même comportement est observé pour tous les essais réalisés sur des échantillons cuits entre 120°C et 400°C (Annexes : B.1 et B.2, C.1 et C.2, D.1 et D.2, E.1 et E.2).

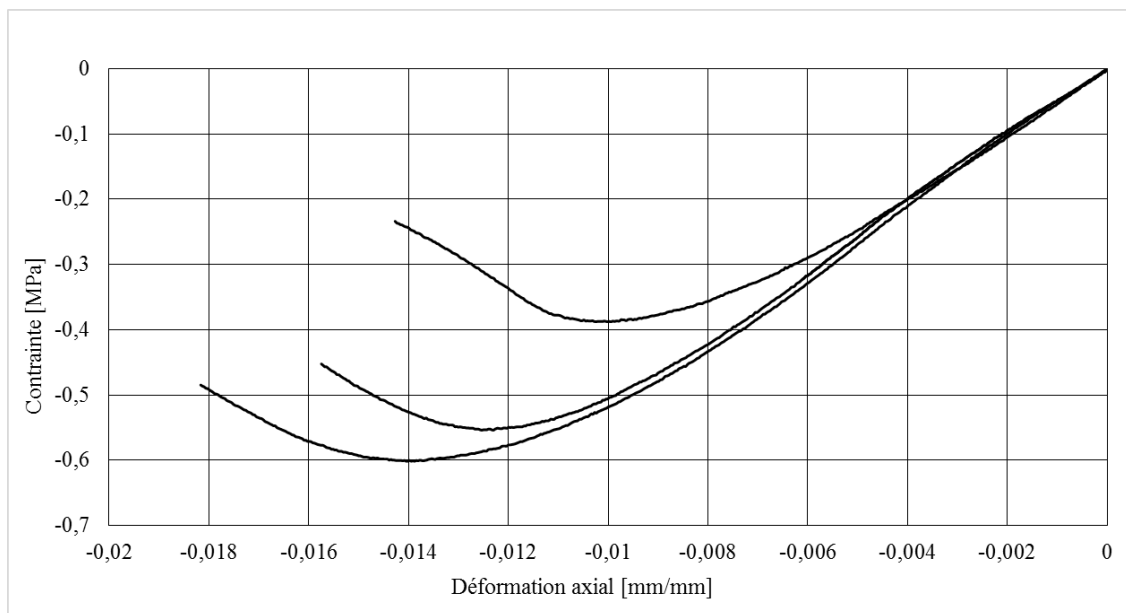


Figure 4.14 : Courbes contrainte vs déformation axiale tracées à partir des essais de compression uniaxiale réalisés à 120°C sur des échantillons d'anode de carbone crus.

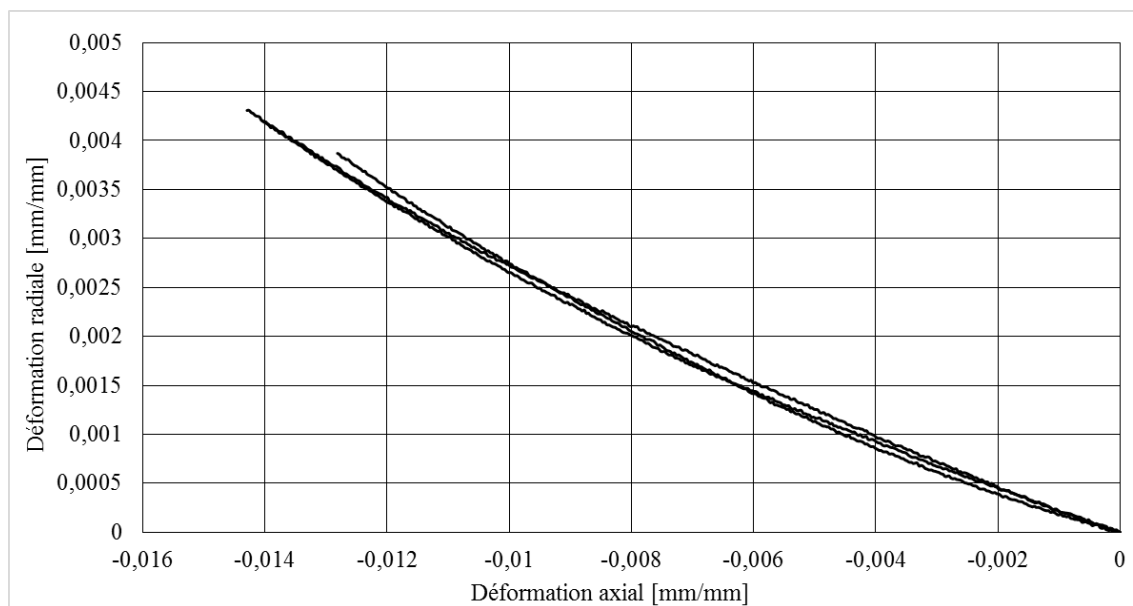


Figure 4.15 : Courbes déformation radiale vs déformation axiale tracées à partir des essais de compression uniaxiale réalisés à 120°C sur des échantillons d'anode de carbone crus.



Figure 4.16 : Échantillon d'anode de carbone fissuré et testé dans sa phase molle (entre 120°C et 400°C) lors d'un essai de compression uniaxiale à chaud.

#### **4.3.2 Compression triaxiale**

Contrairement aux matériaux disposants d'une structure cristalline comme les aciers, les matériaux poreux, granulaires et cohésifs, comme ceux dont il est question dans ce mémoire, ont un comportement mécanique fortement influencé par le niveau de confinement. Dans ce contexte, il est essentiel de mesurer l'impact dudit confinement sur la résistance en compression du matériau et ce, à l'aide d'essais triaxiaux. L'approche proposée ici est réalisée en deux temps. Premièrement, une campagne d'essais triaxiaux est réalisée à TA sur des échantillons cuits à différents niveaux de cuisson afin d'obtenir l'évolution de la résistance en compression en fonction du niveau de confinement. Finalement, une approche est proposée afin de prédire l'évolution de la résistance en

compression à haute température et ce, en l'absence des tests triaxiaux à haute température.

#### **4.3.2.1 Compression triaxiale à TA**

La réalisation d'un essai de compression triaxial consiste à augmenter progressivement la contrainte axiale ( $\sigma_1$ ) tout en maintenant une pression hydrostatique ( $\sigma_3$ ) constante sur l'échantillon durant l'essai et ce, jusqu'à la rupture.

Les essais de compression triaxiale ont été réalisés sur des échantillons d'anode de carbone soumis à trois niveaux de confinement [54] correspondant à 20%, 40% et 60% de la valeur de  $S_{uc}$  (afin de s'assurer de rester dans le domaine élastique du matériau) obtenues des essais de compression uniaxiale à TA soit respectivement: 10 MPa, 20 MPa et 30 MPa. Afin d'observer préalablement l'impact du niveau de cuisson sur la résistance ultime à la compression triaxiale sous différents confinements, des tests ont été réalisés sur des échantillons de carbone crus et cuits à différentes températures et en considérant une contrainte de confinement de 30 MPa.

Trois répétitions ont été effectuées pour chaque niveau de cuisson donné. Les résultats obtenus, et tels que montrés à la figure 4.17, montrent que la résistance ultime en compression triaxiale est peu influencée par le niveau de cuisson (avec une valeur moyenne de 85.61 MPa et un écart-type de 3.56 MPa) pour un niveau de confinement donné. Dans ce contexte, il a été convenu de réaliser les essais triaxiaux (figure 4.17) sur des échantillons correspondant à un seul niveau de cuisson.



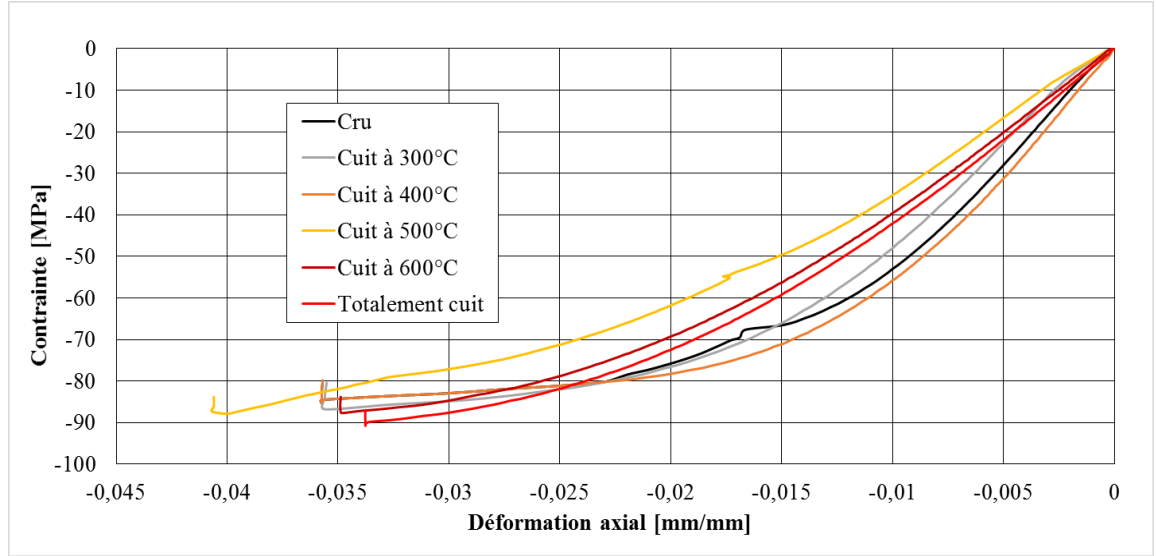


Figure 4.17 : Essais de compression triaxiale à TA sur des échantillons d'anode de carbone crus et cuits à différentes températures soumis à une pression de confinement de 30 MPa.

Les résultats montrés à la figure 4.17 indiquent une augmentation de la résistance ultime en compression triaxiale  $\sigma_1^{TA}$  (contrainte axiale maximale) avec le niveau de confinement  $\sigma_3$  et vice versa. Sans confinement, la valeur de  $\sigma_1^{TA}$  moyenne est d'environ 47.83 MPa, ce qui correspond au résultat obtenu  $S_{uc}$  des essais en compression uniaxiale ( $\sigma_1^{TA} = S_{uc}$ ). Avec des confinements de 10, 20 et 30 MPa, la valeur moyenne de  $\sigma_1^{TA}$  passe à 56.36, 71.71 et 84.41 MPa respectivement. D'autre part, l'adoucissement du matériau décroît avec l'augmentation du confinement, ce qui a pour effet de refermer les microfissures de l'échantillon et par le fait même, de diminuer la porosité. Cet état de confinement favorise donc davantage l'écroutissage et donc, la plastification du matériau, ce qui ne fut pas le cas pour les essais sans confinement dont la rupture observée est de type quasi fragile. La figure 4.19 illustre la variation de la contrainte principale mesurée en fonction de la contrainte de confinement appliquée  $\sigma_3$ .

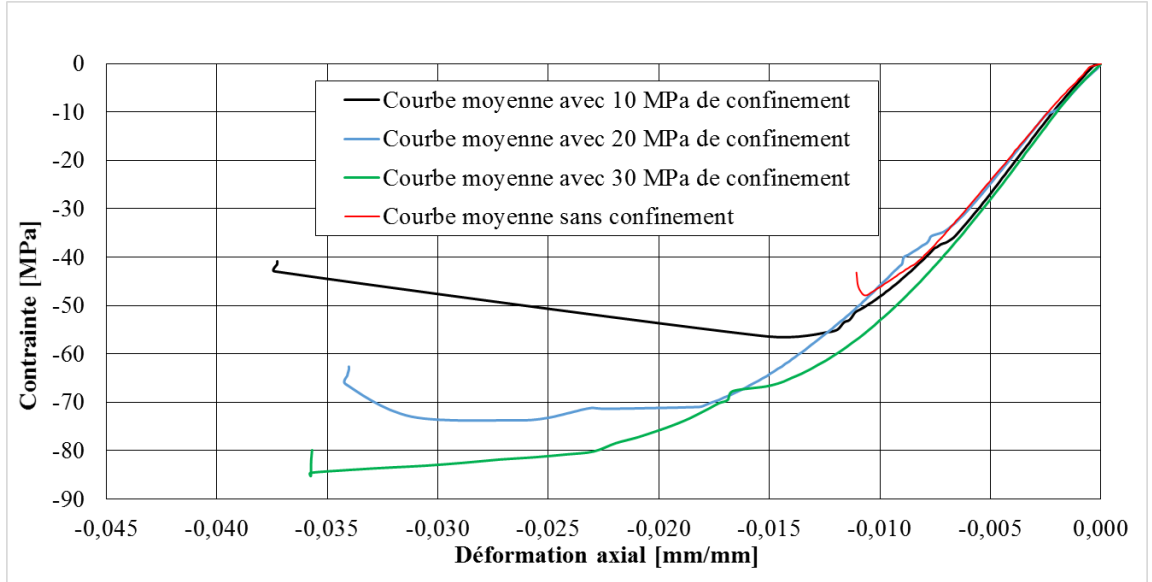


Figure 4.18 : Courbes moyennes des essais de compression triaxiale à TA sur des échantillons d'anode de carbone soumis à différentes pressions de confinement.

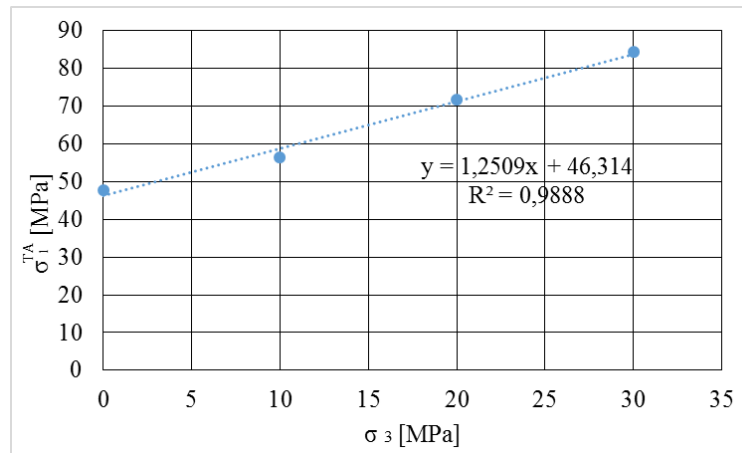


Figure 4.19 : Évolution de la résistance ultime à la compression triaxiale  $\sigma_1^{TA}$  en fonction de la contrainte de confinement  $\sigma_3$ .

#### 4.3.2.2 Compression triaxiale à chaud

En raison de la grande complexité de réaliser des essais triaxiaux à haute température, on propose ici une approche basée sur le maintien du rapport de comportement entre les essais à chaud et à TA observé lors des essais de compression

uniaxiale. En effet, considérant un échantillon cuit à un certain niveau de cuisson, ses résistances en compression uniaxiale déterminées à TA et à chaud (C) sont respectivement  $S_{uc}^{TA}$  et  $S_{uc}^C$ . Lors de la réalisation d'un essai triaxial à TA, le niveau de confinement  $\sigma_3^{TA}$  est donné par :

$$\sigma_3^{TA} = N \cdot S_{uc}^{TA} \quad (4.5)$$

avec  $N = 20\%$ ,  $40\%$  et  $60\%$ , et la résistance en compression pour ce niveau de confinement obtenue est notée  $\sigma_1^{TA}$ . De la même manière, si un essai triaxial à chaud devait être réalisé sur le même échantillon, le niveau de confinement  $\sigma_3^C$  serait donné par :

$$\sigma_3^C = N \cdot S_{uc}^C \quad (4.6)$$

et sa résistance en compression obtenue serait notée  $\sigma_1^C$ . Considérant le rapport entre les résistances en compression uniaxiale obtenues à chaud et à TA noté :

$$\beta = \frac{S_{uc}^C}{S_{uc}^{TA}} \quad (4.7)$$

le niveau de confinement à TA (équation 4.5) peut s'écrire à l'aide des équations 4.6 et 4.7 tel que :

$$\sigma_3^{TA} = N \cdot \frac{S_{uc}^C}{\beta} = N \cdot \frac{1}{\beta} \cdot \frac{\sigma_3^C}{N} \quad (4.8)$$

ce qui implique que :

$$\beta = \frac{\sigma_3^C}{\sigma_3^{TA}} \quad (4.9)$$

On peut donc supposer que le même rapport ( $\beta$ ) sera également maintenu entre les résistances en compression triaxiale obtenues à chaud ( $\sigma_1^C$ ) et à TA ( $\sigma_1^{TA}$ ) tel qu'à partir des équations 4.7 et 4.9 on a:

$$\beta = \frac{S_{uc}^C}{S_{uc}^{TA}} = \frac{\sigma_3^C}{\sigma_3^{TA}} = \frac{\sigma_1^C}{\sigma_1^{TA}} \quad (4.10)$$

Considérant que les résistances en compression évoluent avec le niveau de cuisson, on peut réécrire l'équation 4.10 tel que :

$$\sigma_1^C(T) = \beta(T) \cdot \sigma_1^{TA}(T) \quad (4.11)$$

avec

$$\beta(T) = \frac{S_{uc}^C(T)}{S_{uc}^{TA}(T)} \quad (4.12)$$

La relation 4.12 peut être obtenue directement via le rapport des courbes montrées à la figure 4.11. La figure 4.20 présente l'évolution du facteur  $\beta$  en fonction du niveau

de cuisson.  $\beta(T)$  étant connu, il devient possible de quantifier l'évolution de la résistance en compression triaxiale à chaud en multipliant ce facteur par les valeurs de la résistance en compression triaxiale à TA montrés à la figure 4.18. La figure 4.21 montre l'évolution de la résistance en compression triaxiale à chaud en fonction de la température de cuisson et ce, pour les niveaux de confinement à chaud considérés (identifiés à partir de l'équation 4.9). Les résultats obtenus montrent que la résistance en compression triaxiale à chaud  $\sigma_1^c$  a le même comportement que celle à TA pour les échantillons cuits à 500°C et plus, telle que  $\sigma_1^c$  augmente avec le niveau de confinement  $\sigma_3^c$  appliqué. Cependant, et pour des niveaux de cuisson au-dessous de 500°C,  $\sigma_1^c$  présente des valeurs très faibles et augmente de façon insignifiante et ce, à cause de la nature molle de l'échantillon de carbone dans l'intervalle des températures situées entre 120°C et 400°C.

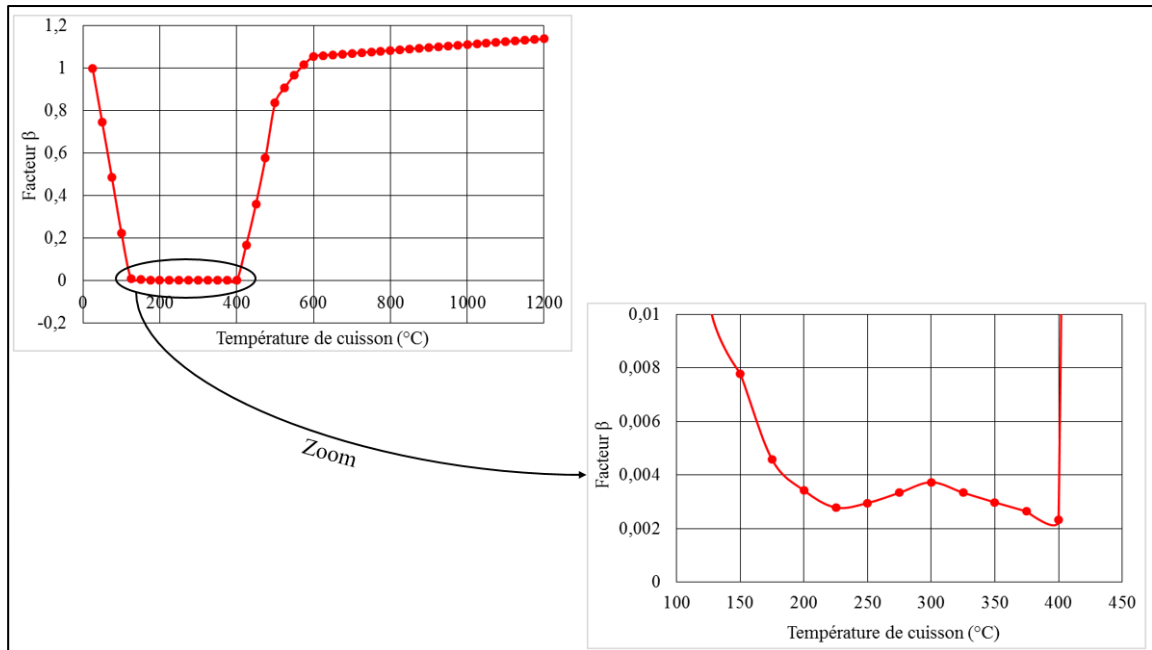


Figure 4.20 : Évolution du facteur  $\beta$  en fonction de la température de cuisson.

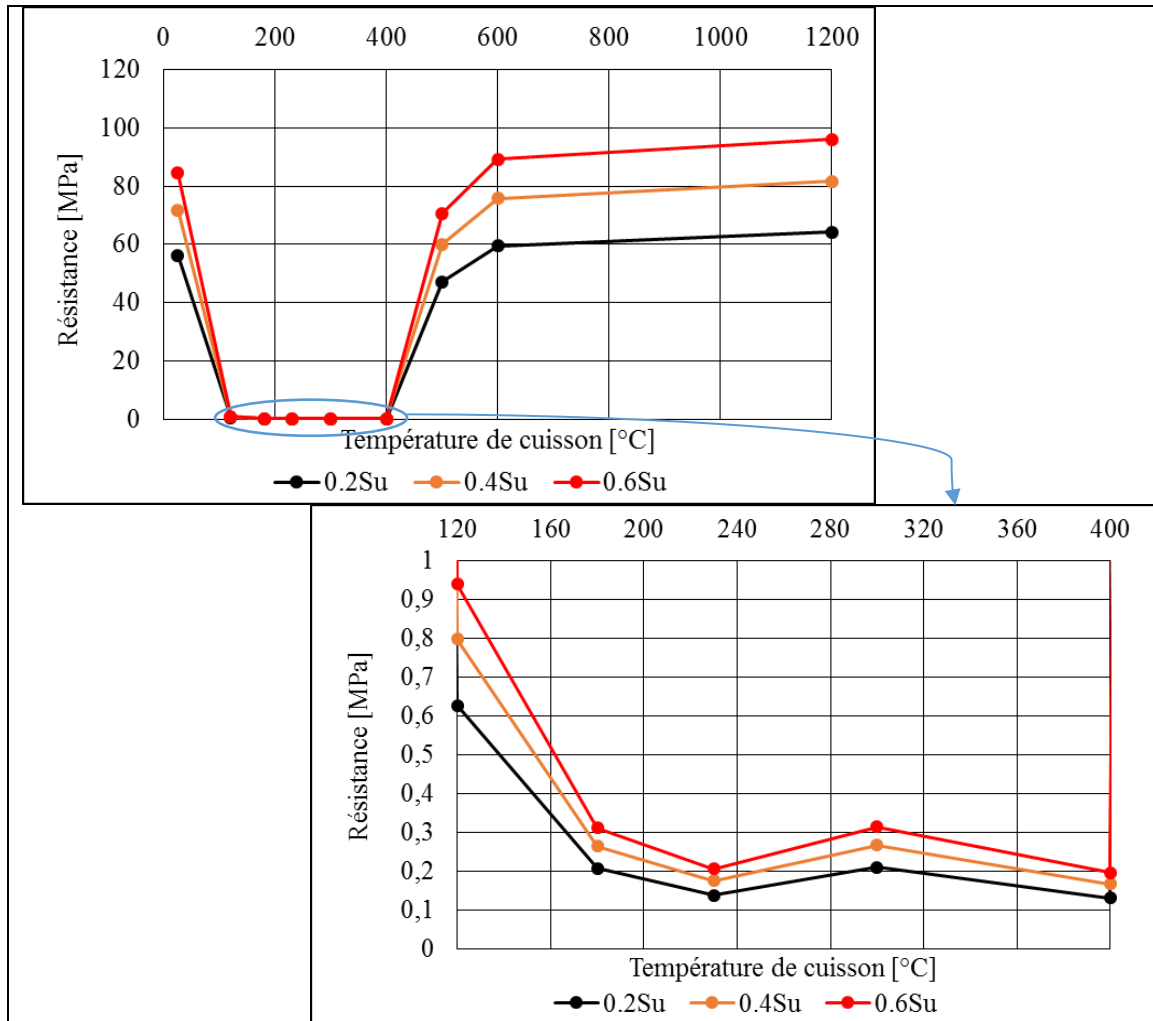


Figure 4.21 : Évolution de la compression triaxiale à chaud en fonction de la température de cuisson suivant le niveau de confinement ( $0.2 S_{uc}$ ,  $0.4 S_{uc}$  et  $0.6 S_{uc}$ ).

#### 4.3.3 Définition de l'enveloppe de rupture

Lors d'un essai de compression triaxiale, la rupture de l'échantillon se manifeste par une chute de la contrainte suite au développement des fissures, ou glissement sur un plan de rupture préexistant. Conséquent des résultats obtenus des essais de compression uniaxiale et triaxiale, il fut possible de définir l'enveloppe de rupture du matériau. L'un des modèles encore très utilisés pour la représentation de l'enveloppe de rupture des

matériaux fragiles est celui de Mohr-Coulomb [57]. Selon ce critère, la rupture du matériau se produit pour chaque état de contrainte  $(\sigma, \tau)$  se trouvant à la limite des cercles de Mohr (figure 4.22). Dans la littérature, plusieurs travaux ont étudié l'enveloppe de rupture sur les sols [58], les cathodes [42], la pâte monolithique [30] et le béton [59]. L'enveloppe de rupture est définie dans l'espace des contraintes normale et de cisaillement  $(\sigma, \tau)$  sur la base de deux paramètres physiques du matériau que sont la cohésion  $\tau_0$  et l'angle de frottement interne  $\varphi$  tels que :

$$\tau = \tau_0 + \sigma \tan \varphi \quad (4.13)$$

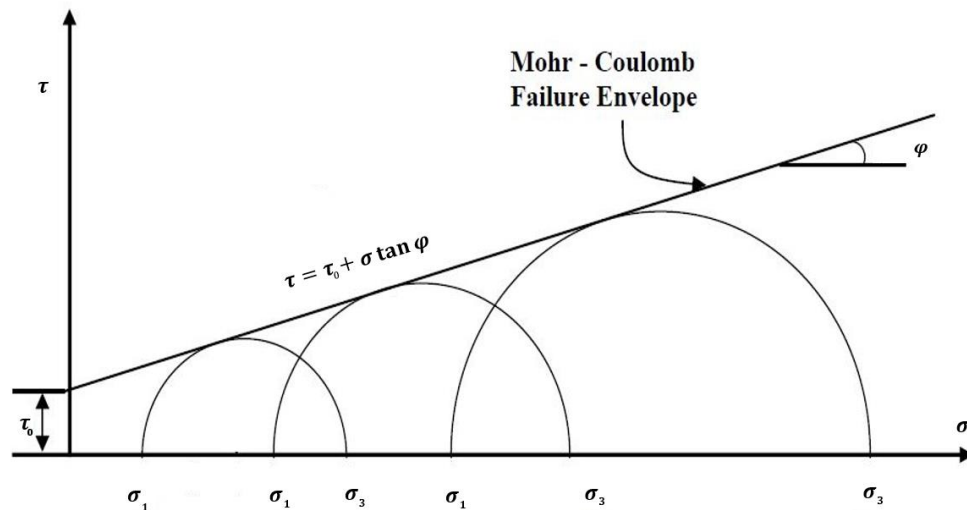


Figure 4.22 : Graphique typique du critère de Mohr-Coulomb [60].

La norme ASTM D 2664 [54] présente la procédure permettant d'identifier lesdits paramètres. Conséquent des résultats obtenus des essais triaxiaux à chaud en fonction du niveau de cuisson (figure 4.23), il apparaît donc naturel d'identifier les valeurs de  $\tau_0$  et de  $\varphi$  en fonction du niveau de cuisson.

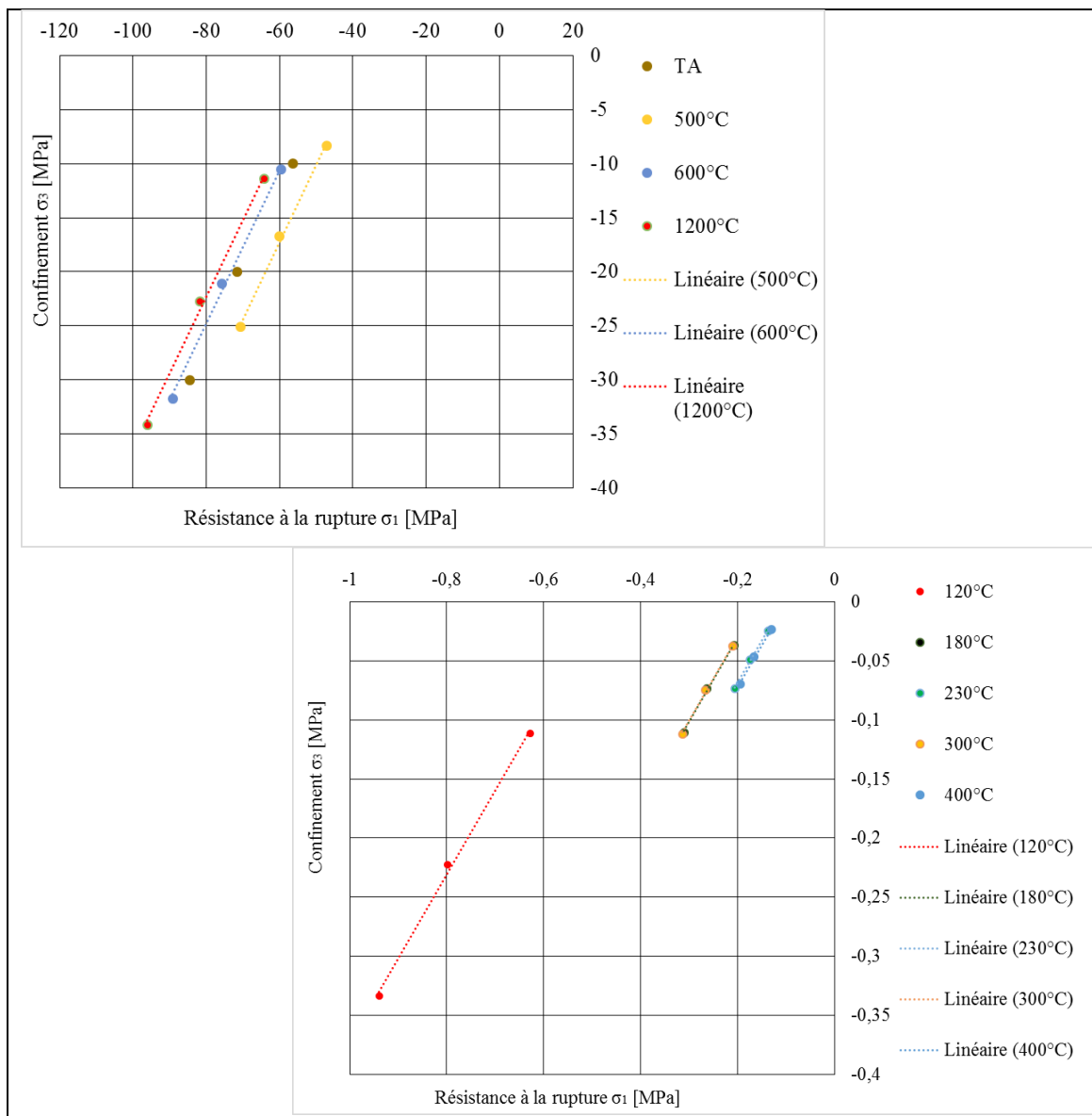


Figure 4.23 : Compression triaxiale à chaud des échantillons d'anode de carbone soumis à différents niveaux de confinement suivant différentes températures de cuisson allant de l'état cru à l'état totalement cuit.

La droite décrivant l'enveloppe de rupture (équation 4.13) représente la tangente aux trois cercles de Mohr (figure 4.22) correspondants à chaque résistance en compression triaxiale issue des trois confinements appliqués. Le paramètre  $\tau_0$  est obtenu



via l'ordonnée à l'origine de cette droite et  $\varphi$ , via l'angle sous-tendu entre l'axe des contraintes  $\sigma$  et ladite droite.

L'équation 4.13 peut également être exprimée en fonction des contraintes axiales  $\sigma_1$  et de confinement  $\sigma_3$  [61] tel que:

$$\sigma_3 = A \sigma_1 + B \quad (4.14)$$

avec :

$$A = \frac{1 - \sin\varphi}{1 + \sin\varphi} \quad (4.15)$$

$$B = \tau_0 \frac{2 \cos\varphi}{1 + \sin\varphi} \quad (4.16)$$

Conséquent des résultats obtenus, la figure 4.23 présente l'évolution de l'équation 4.14 en fonction du niveau de cuisson. Les valeurs de  $\tau_0$  et  $\varphi$  peuvent maintenant être identifiées telles que montrées à la figure 4.24. La valeur de l'angle  $\varphi$  est  $9.72^\circ$  tandis que  $\tau_0$  évolue. Les résistances en traction et en compression uniaxiale (figure 4.25) peuvent être obtenues des équations 4.17 et 4.18 [61] tel que :

$$S_{uc} = -\tau_0 \frac{2 \cos\varphi}{1 - \sin\varphi} \quad (4.17)$$

$$S_{ut} = \tau_0 \frac{2 \cos \varphi}{1 + \sin \varphi} \quad (4.18)$$

Suivant le critère du Mohr-Coulomb utilisé, les paramètres de l'enveloppe de rupture sont identifiés suivant le niveau de cuisson. Les résultats obtenus montrent que  $S_{uc}$  et  $S_{ut}$  se comportent d'une manière similaire tels que montrés à la figure 4.25 (les paramètres sont présentés en détail au tableau de l'annexe F). Ce comportement s'explique encore une fois par la nature molle de l'anode de carbone dans cet intervalle de température et ce, jusqu'à une cokéfaction significative du brai, soit à une température de cuisson de 500°C environ. Cependant, l'essai de traction présente des valeurs très élevées, voir même irréalistes, voisines de celles de l'essai de compression triaxial, ce qui prouve que le critère de Mohr-Coulomb est inconvenable pour ce genre de matériau et donc, il est recommandé de remplacer ce critère par un autre qui sera capable de bien caractériser l'enveloppe de rupture en traction.

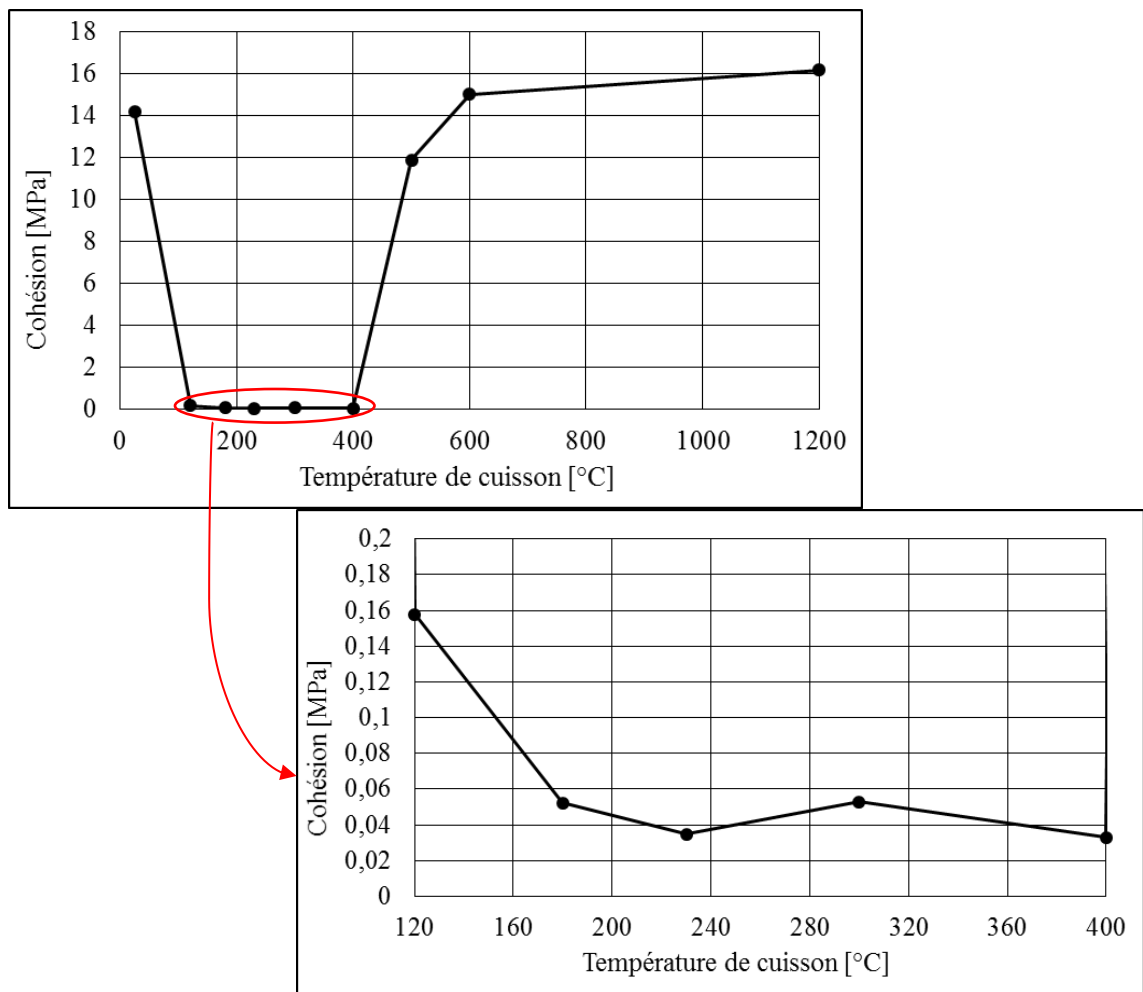


Figure 4.24 : Évolution du cohésion  $\tau_0$  en fonction de la température de cuisson.

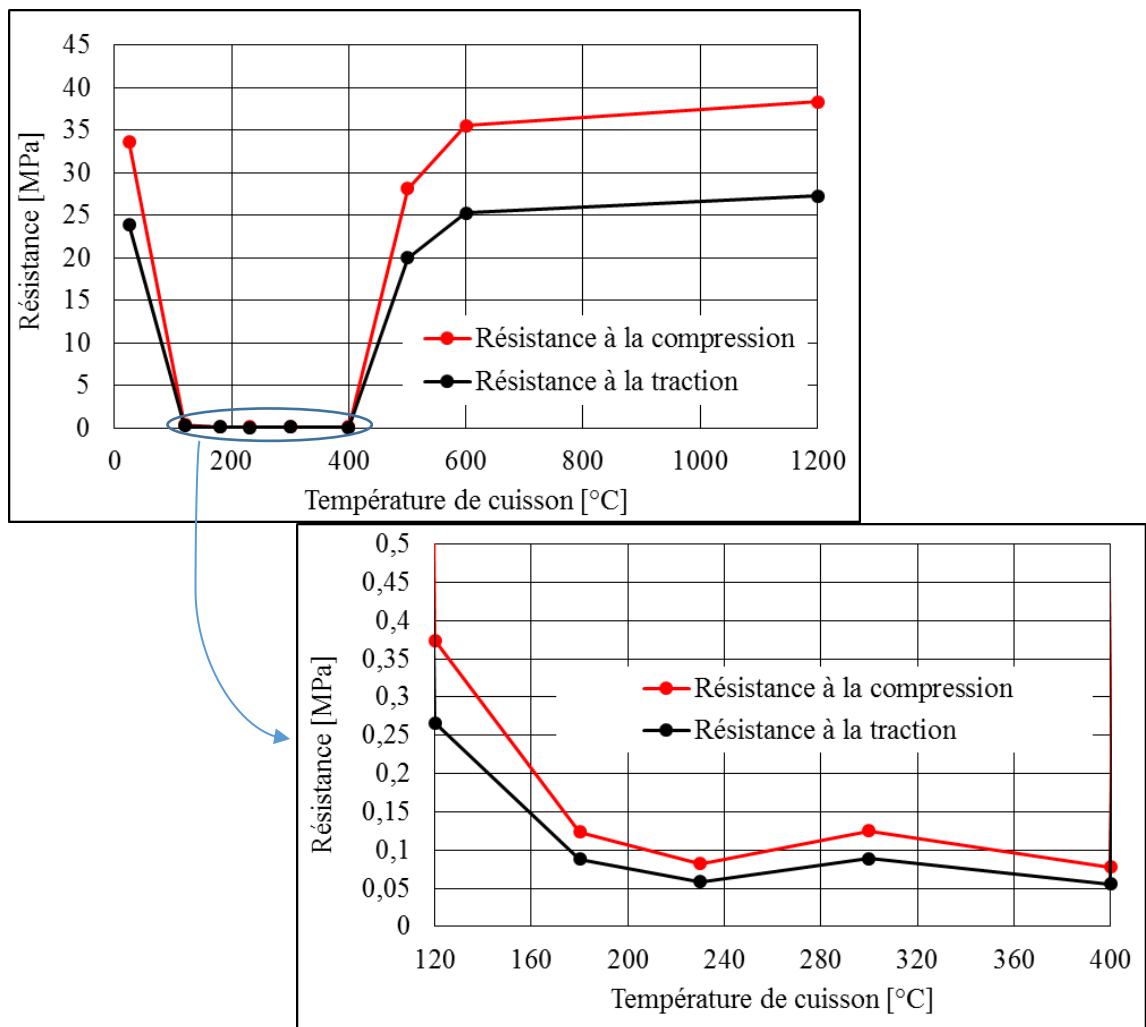


Figure 4.25 : Évolution de la compression et de la traction uniaxiale à chaud issues de l'enveloppe de rupture en fonction de la température de cuisson.

#### 4.4 Caractérisation du comportement en fluage/recouvrance

Lors de sa cuisson dans le four, l'anode est soumise à différents efforts mécaniques dans le temps et ce, conséquent des mécanismes de déformation d'origine thermiques, chimiques et mécaniques qui peuvent affecter la qualité finale de ladite anode. Du point de vue mécanique, le changement de viscosité du brai (liant), dû aux

changements de la température pendant la cuisson est à l'origine de l'apparition des mécanismes de déformation visqueuse telle que le fluage.

Plusieurs travaux antérieurs ont permis de mettre en évidence les mécanismes de fluage dans des matériaux de même nature dont le béton et la pâte monolithique [30, 47]. Dans cette section, on présente les résultats d'une étude expérimentale permettant d'observer et de quantifier le mécanisme de déformation dans le temps de l'anode de carbone et donc, en fonction du niveau de cuisson.

#### **4.4.1 Fluage**

Afin d'avoir une meilleure compréhension du comportement visqueux de l'anode de carbone, une étude expérimentale de sa déformation dans le temps s'avère nécessaire. En effet, plusieurs essais de fluage avec mesure de la déformation dans les directions axiale (fluage axial) et radiale (fluage radial) ont été réalisés et ce, sur des échantillons d'anode de carbone cuits à différents niveaux de cuisson. Tel que mentionné dans le chapitre précédent, les essais de fluage ont été effectués à TA et à haute température (à 120°C, 180°C et 230°C pour les échantillons crus, ainsi qu'à 250°C pour les échantillons cuits à 300°C et plus) pour avoir une idée réaliste de ce qui se passe vraiment dans le four pendant la phase de cuisson (tableau 3.2).

Les résultats présentés aux figures 4.26 à 4.32 présentent la moyenne des déformations (avec trois répétitions) pour un niveau de chargement. Les données pour le fluage ont été enregistrées aussitôt la contrainte cible atteinte. Les résultats obtenus montrent que le phénomène de fluage est bel et bien présent dans l'anode de carbone

crue testée à TA (figure 4.26) et ce, malgré les faibles amplitudes de déformation mesurées. En effet, la faible amplitude des déformations mesurées a exigé l'utilisation de LVDT à très haute précision ; ce qui a occasionné beaucoup de bruit avec des fluctuations intenses sur les mesures surtout dans la direction radiale. Ceci s'explique par le fait que le brai liant dispose toujours d'une importante viscosité à TA (il n'est pas encore cokéfié).

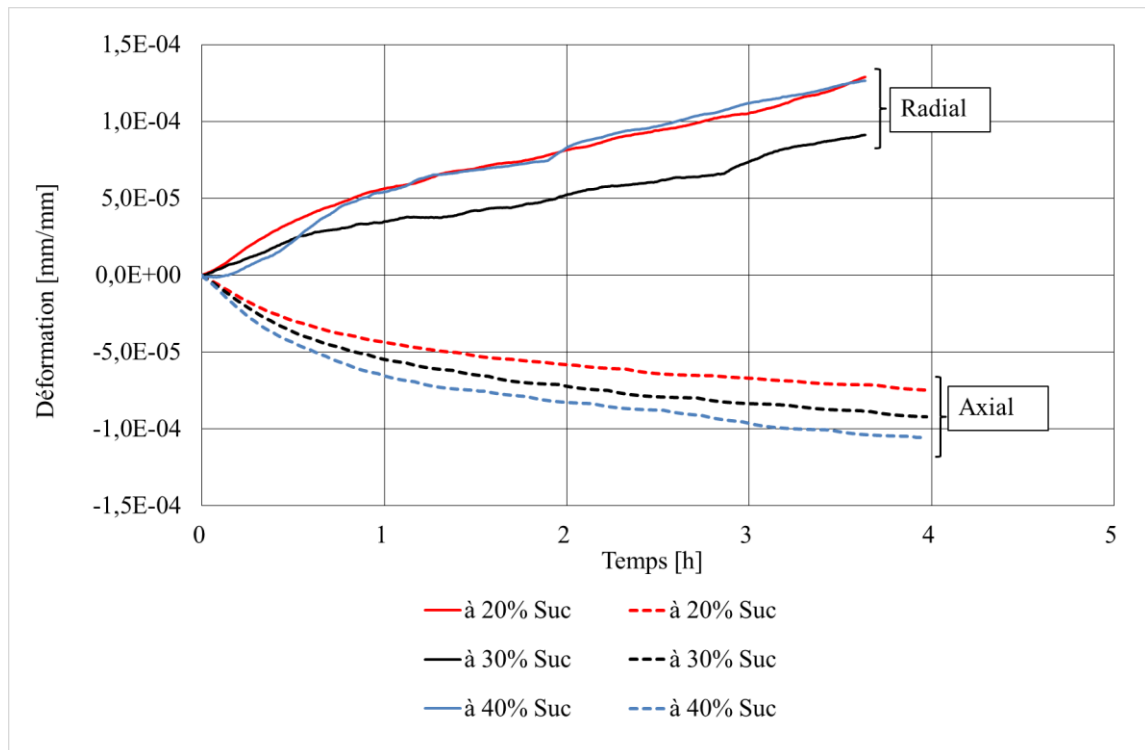


Figure 4.26 : Fluage dans les directions axiale et radiale des échantillons d'anode de carbone crus testés à 25°C.

Les résultats en fluage obtenus à 120°C (figure 4.27) montrent que l'amplitude des déformations augmente avec la contrainte appliquée. En effet, à une contrainte de 20% de la résistance ultime à la compression  $S_{uc}$ , le taux de déformation diminue rapidement pour atteindre la phase secondaire (stable) du fluage tandis que pour une

contrainte de 30% de la valeur de  $S_{uc}$ , le taux de déformation est plus important au début du fluage et aura pris plus de temps à se stabiliser avant d'atteindre la phase secondaire. Finalement, avec une contrainte de 40% de  $S_{uc}$ , la phase primaire de fluage est encore plus importante avec une amplitude de déformations encore plus élevée. Cette tendance est observée dans les deux directions des déformations axiale et radiale.

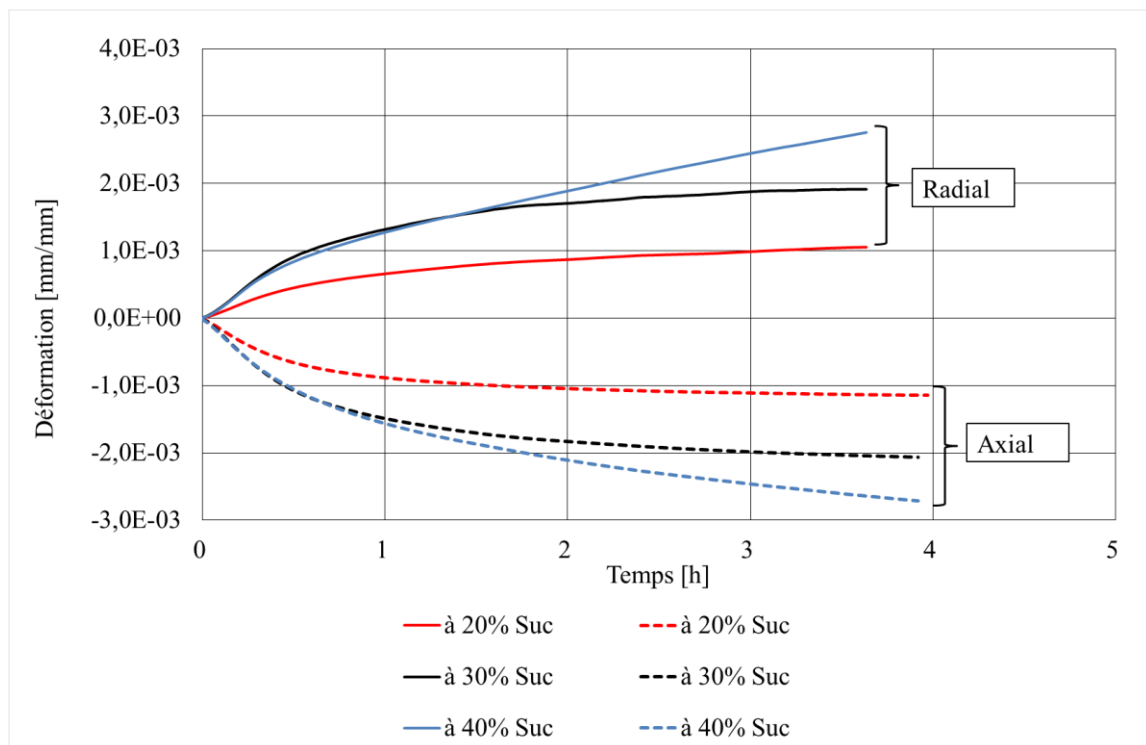


Figure 4.27 : Fluage dans les directions axiale et radiale des échantillons d'anode de carbone crus testés à 120°C.

Le même comportement est observé pour l'ensemble des essais réalisés sur les échantillons crus testés à 180°C et 230°C (figure 4.28 et 4.29), ainsi que sur les échantillons partiellement cuits jusqu'à 300°C et 400°C (figure 4.30 et 4.31). L'amplitude des déformations pour les essais réalisés entre 180°C et 300°C fut passablement inférieure à celle de 120°C, malgré une légère augmentation observée à

300°C. Ceci est dû à la nature molle de l'échantillon d'anode de carbone à 120°C, et qui tend encore plus vers un fluide entre 180°C et 400°C.

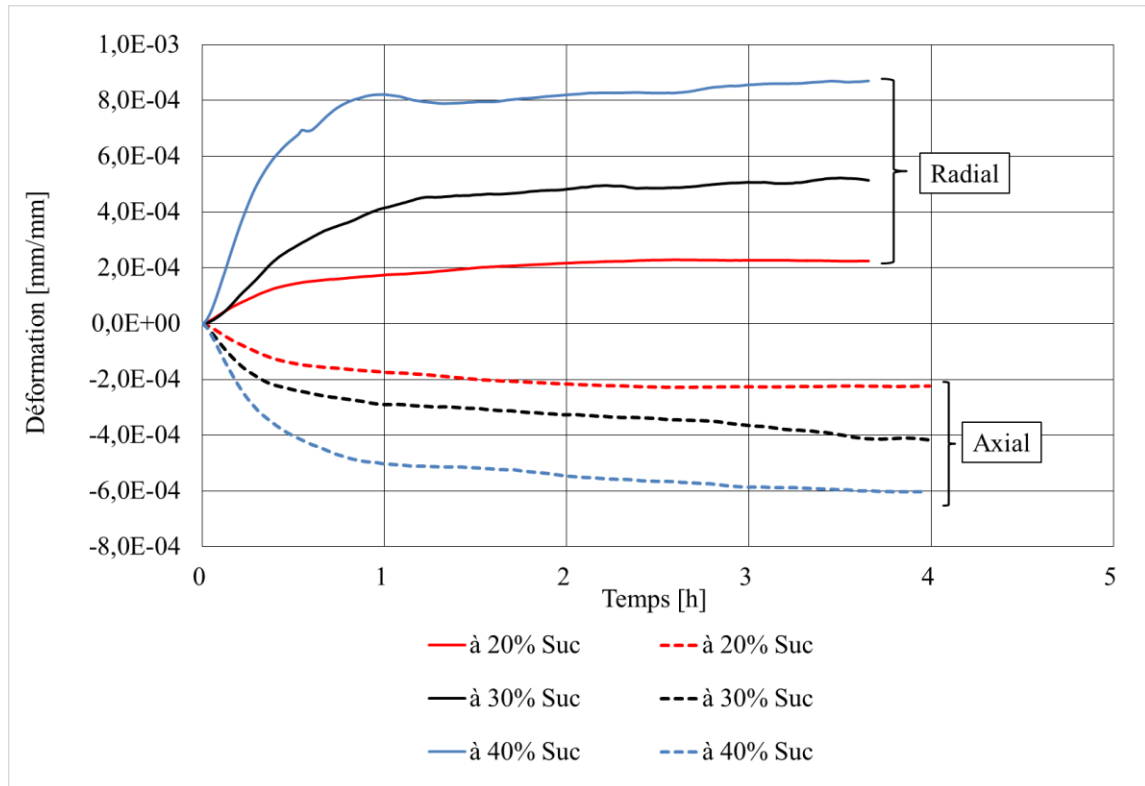


Figure 4.28 : Fluage dans les directions axiale et radiale des échantillons d'anode de carbone crus testés à 180°C.



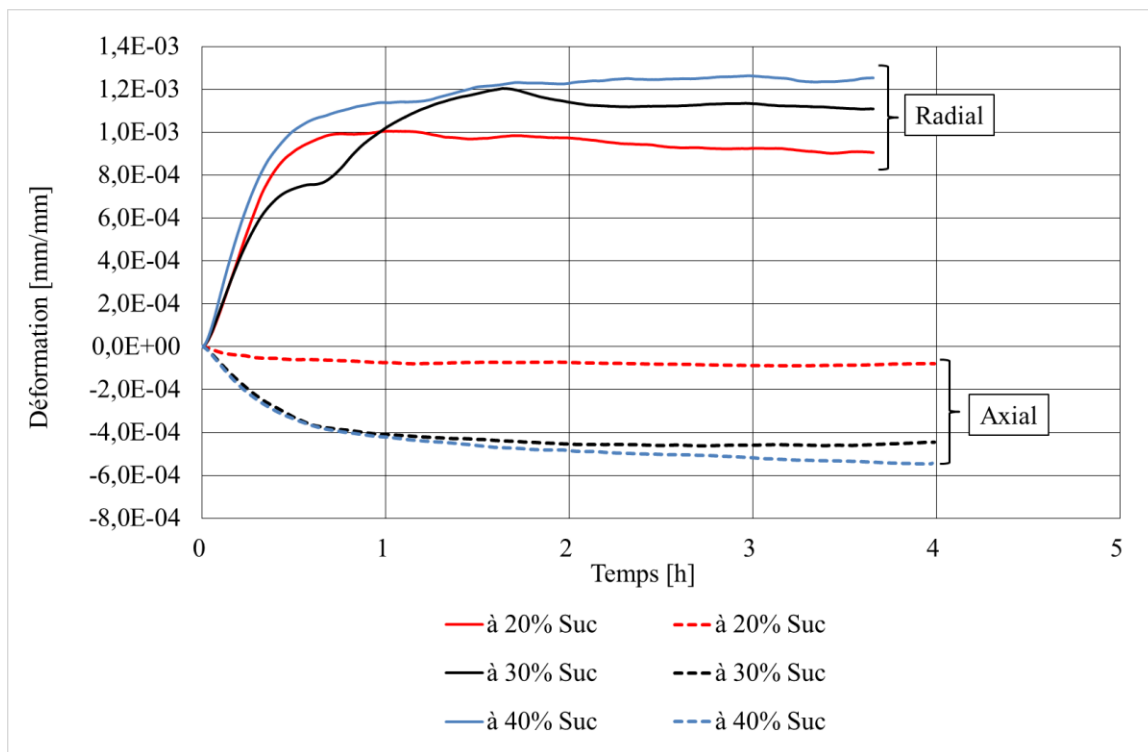


Figure 4.29 : Fluage dans les directions axiale et radiale des échantillons d'anode de carbone crus testés à 230°C.

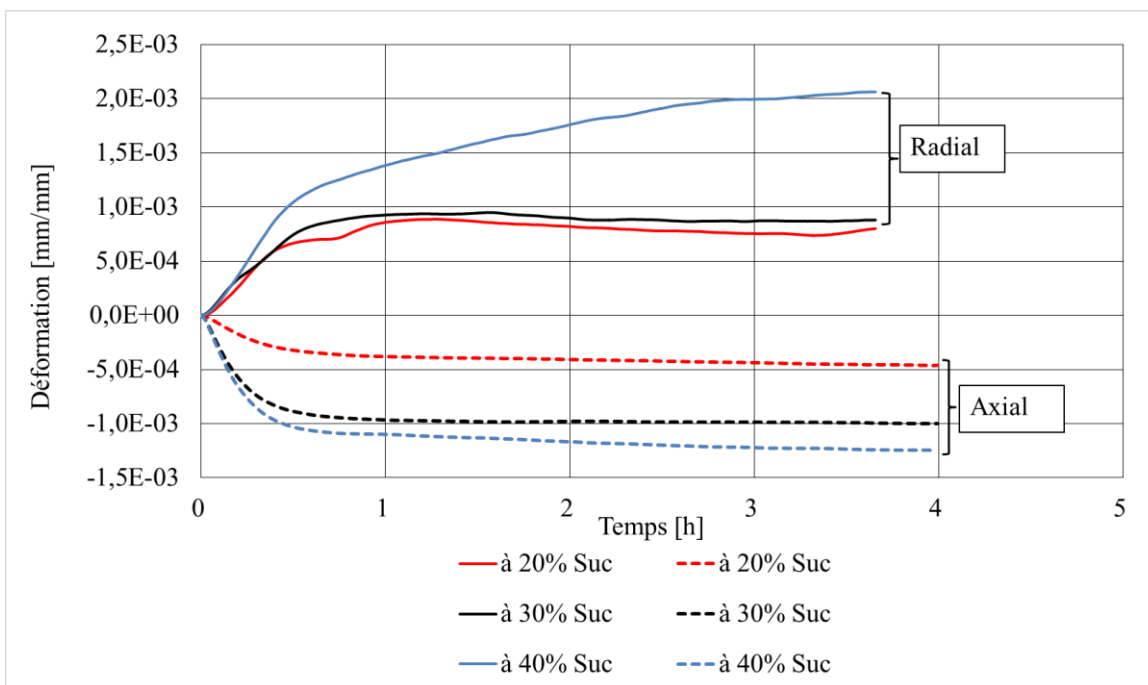


Figure 4.30 : Fluage dans les directions axiale et radiale des échantillons d'anode de carbone cuits à 300°C testés à 250°C.

En ce qui concerne les essais de fluage réalisés à 400°C (figure 4.31), les résultats obtenus montrent une déformation positive de l'échantillon d'anode soumis à une contrainte de 40% de la valeur de  $S_{uc}$ . Ceci peut être expliqué par l'expansion de l'échantillon due à une quantité importante des volatiles dégagés. En effet, l'expansion de l'échantillon génère une contrainte supérieure à la contrainte axiale du fluage appliquée (inverse à la compression appliquée), et donc on a une déformation positive (encerclée en vert à la figure 4.31). De plus, le fait que le fluage n'a pas pu être observé dans la direction axiale avec une contrainte de 40% de  $S_{uc}$  peut s'expliquer par la cokéfaction partielle du brai qui a commencé à prendre place, amenant ainsi une certaine rigidité à partir de 400°C. Cependant, à 40% de  $S_{uc}$ , le fluage est bel et bien présent dans la direction radiale, ceci peut être expliqué par le gonflement de l'échantillon dû à l'expansion et à la libération des volatiles avec un état de cuisson de 400°C. Pour des contraintes supérieures allant jusqu'à 60% et 80% de la valeur de  $S_{uc}$ , on constate que fluage est bel et bien présent.

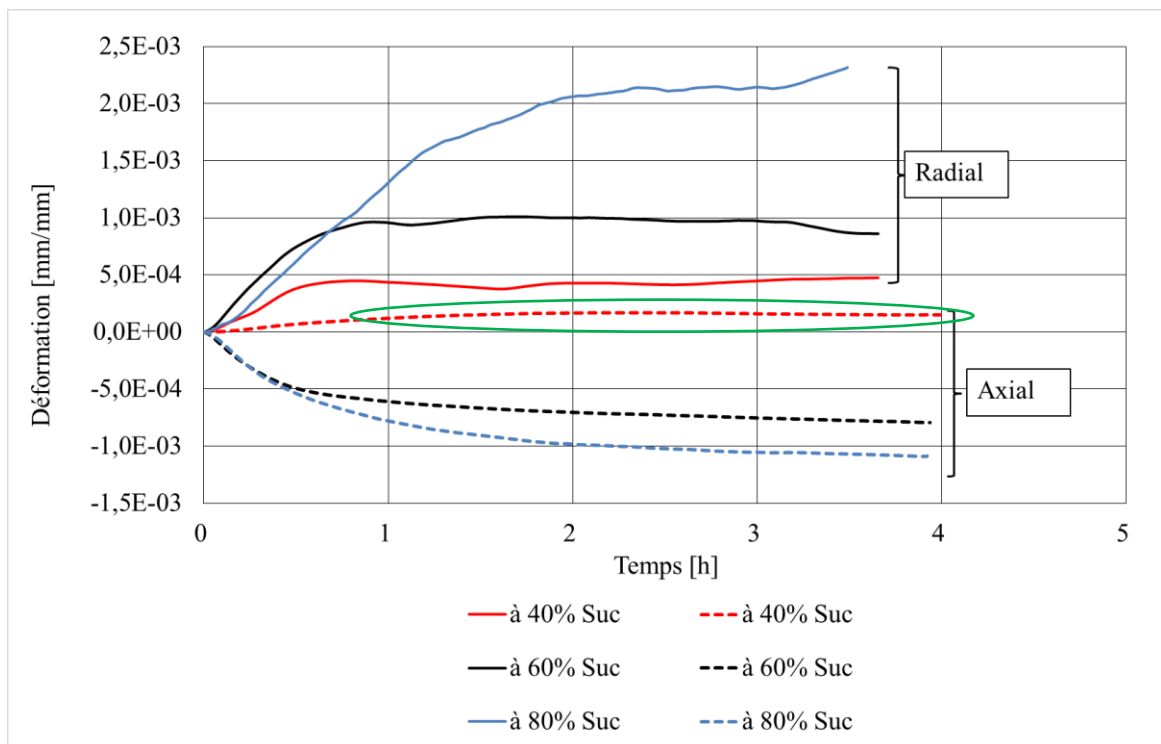


Figure 4.31 : Fluage dans les directions axiale et radiale des échantillons d'anode de carbone cuits à 400°C testés à 250°C.

Finalement, les derniers essais ont été réalisés sur des échantillons cuits à 500°C (figure 4.32). Pour les différents niveaux de contraintes appliquées allant de 40% à 80% de la valeur de  $S_{uc}$ , le phénomène de fluage ne s'est pas manifesté, ce qui nous a incités fortement à ne pas réaliser les tests pour des températures de cuisson de 600°C et 1200°C. L'absence de fluage s'explique par le fait que la cokéfaction du brai aura permis le développement d'une rigidité suffisante à l'empêchement des phénomènes de fluage pour les niveaux de chargement considérés.

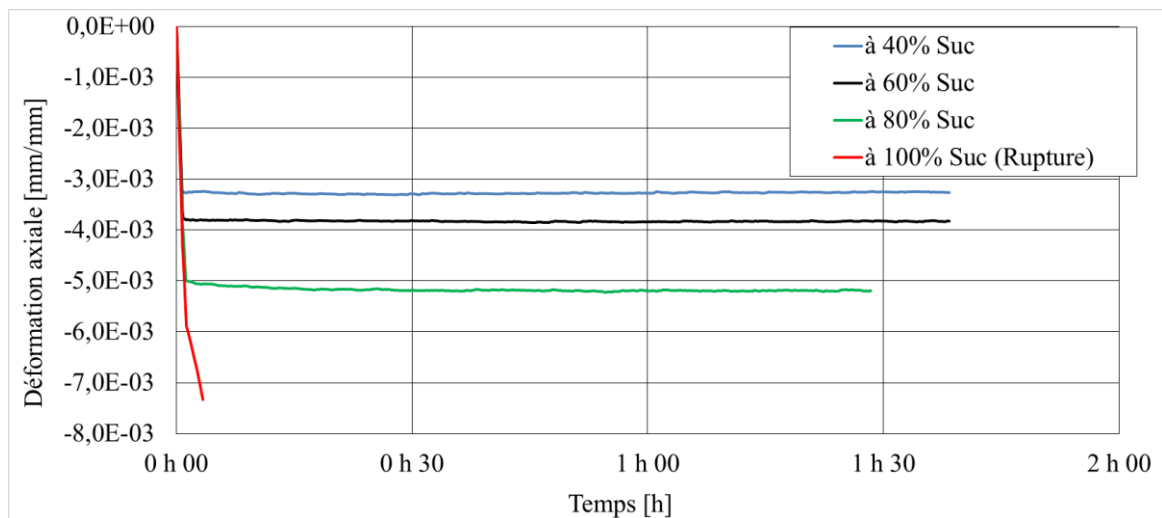


Figure 4.32 : Fluage axial des échantillons d'anode de carbone cuits à 500°C testés à 250°C.

#### 4.4.2 Recouvrance

La deuxième partie de la caractérisation du comportement visqueux des anodes de carbone est consacrée à la recouvrance. Le phénomène de recouvrance est observé une fois que la contrainte est retirée (figure 4.33).

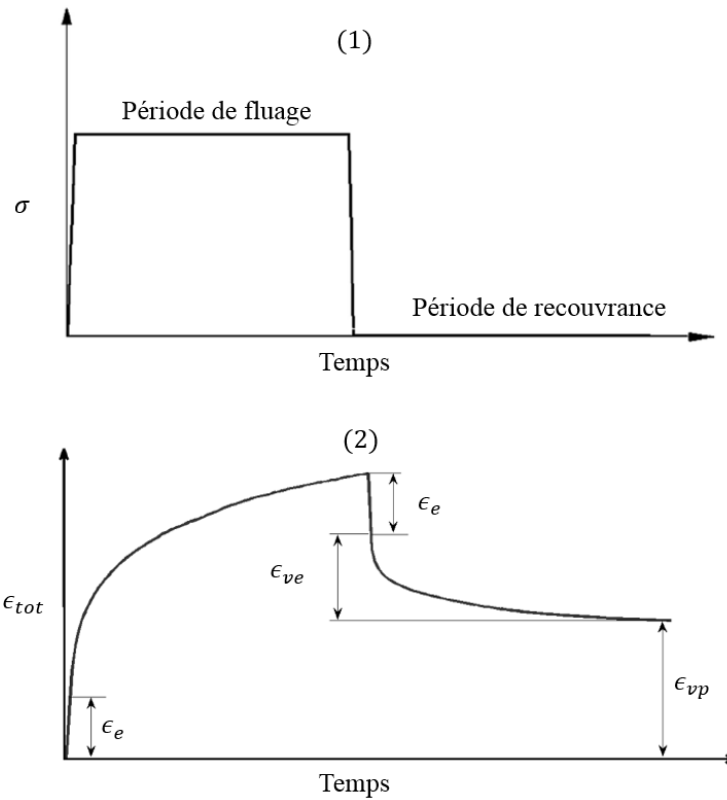


Figure 4.33 : Courbe contrainte-temps conventionnelle (1) issue d'un essai de fluage/recouvrance (2) [40].

La recouvrance est un mécanisme permettant d'observer l'influence des mécanismes de déformation réversibles et irréversibles. Afin de bien visualiser ce phénomène (figure 4.34 à 4.46), les données ont été enregistrées dès l'application de la contrainte (en gardant toute la partie de la montée en chargement) et ce, afin d'observer le pourcentage de la partie récupérée.

Les résultats obtenus montrent que la déformation générée n'est pas totalement récupérée lors de la recouvrance. Donc, on peut en déduire qu'en plus des déformations élastiques instantanées  $\epsilon_e$  et viscoélastiques  $\epsilon_{ve}$ , une déformation de nature viscoplastique s'est développée lors de la phase primaire du fluage. Ceci aura permis de

mettre en évidence que la phase primaire de fluage n'est pas seulement viscoélastique, mais aussi viscoplastique. Cette tendance est observée pour tous les essais de fluage avec recouvrance et ce, autant dans la direction axiale que radiale (les recouvrances axiales et radiales sont séparées pour des raisons de clartés des courbes).

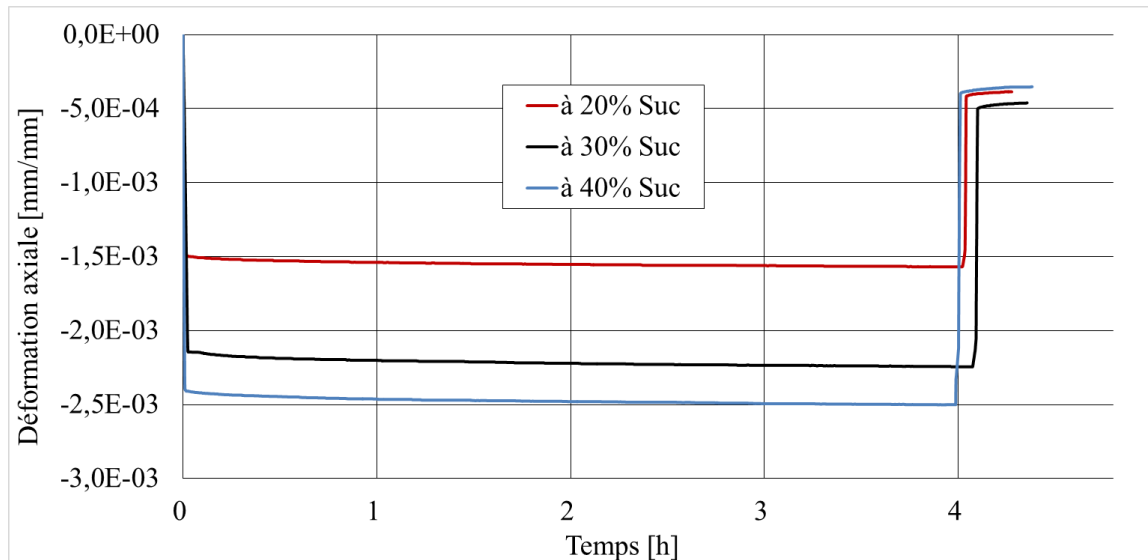


Figure 4.34 : Fluage/recouvrance axial des échantillons d'anode de carbone crus testés à 25°C.

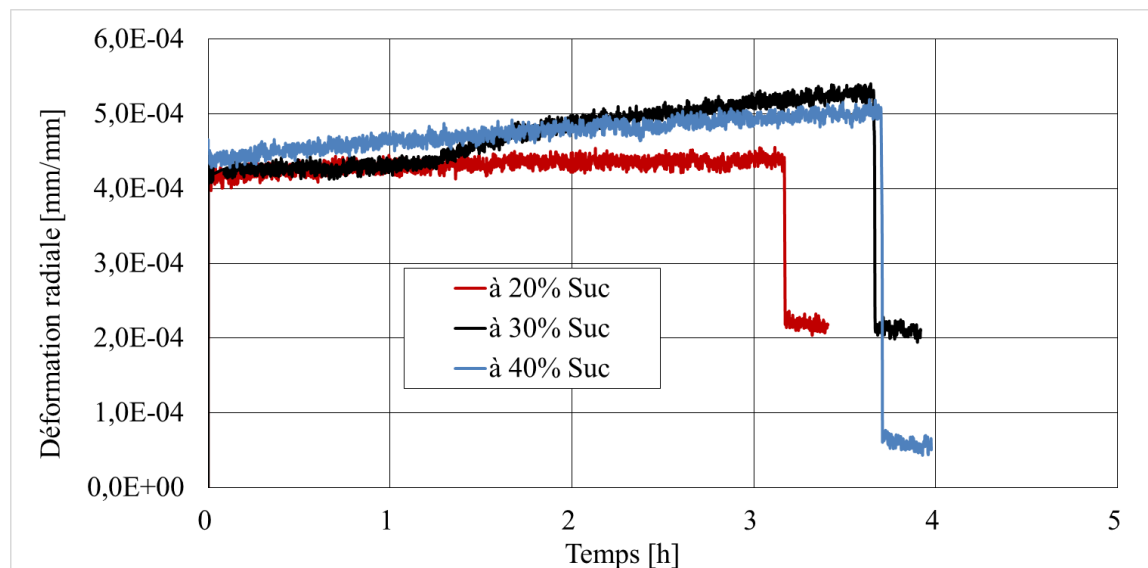


Figure 4.35 : Fluage/recouvrance radial des échantillons d'anode de carbone crus testés à 25°C.

En raison de la faible viscosité de l'anode de carbone sur l'intervalle de température entre 120°C et 400°C, l'anode de carbone s'est plastifiée rapidement, laissant ainsi peu de place aux déformations élastiques (figure 4.36 à 4.45).

Cependant, en ce qui concerne les essais réalisés sur les échantillons partiellement cuits à 500°C (figure 4.46), les résultats obtenus montrent que la déformation totale  $\varepsilon_{tot}$  est entièrement récupérée, ce qui prouve qu'il n'y a pas de déformation viscoplastique  $\varepsilon_{vp}$  générée. Cette observation confirme les résultats obtenus dans le paragraphe précédent, et qui montrent l'absence de fluage pour les échantillons qui ont été cuits au-delà de 500°C.

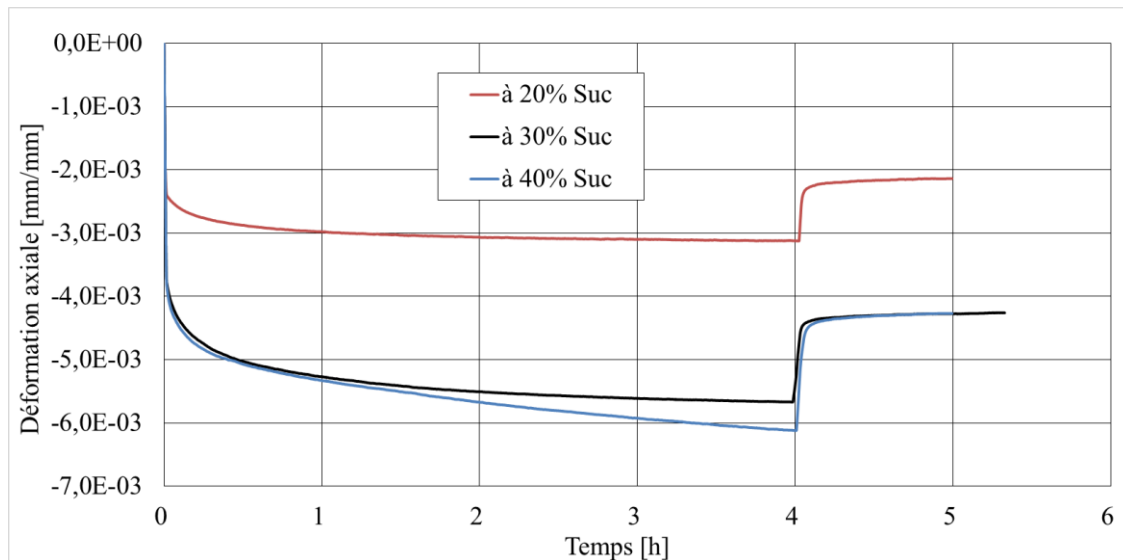


Figure 4.36 : Fluage/recouvrance axial des échantillons d'anode de carbone crus testés à 120°C.

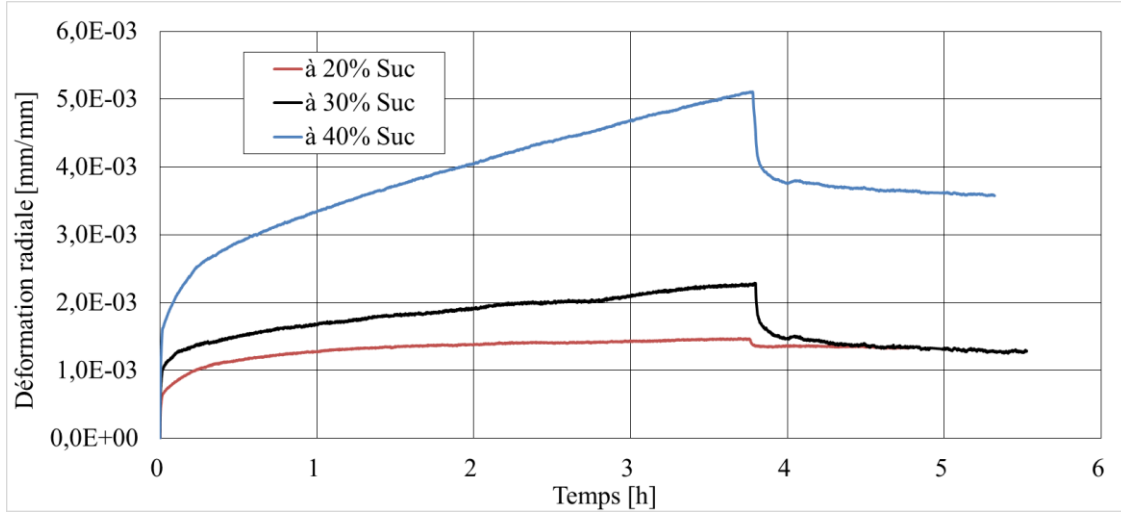


Figure 4.37 : Fluage/recouvrance radial des échantillons d'anode de carbone crus testés à 120°C.

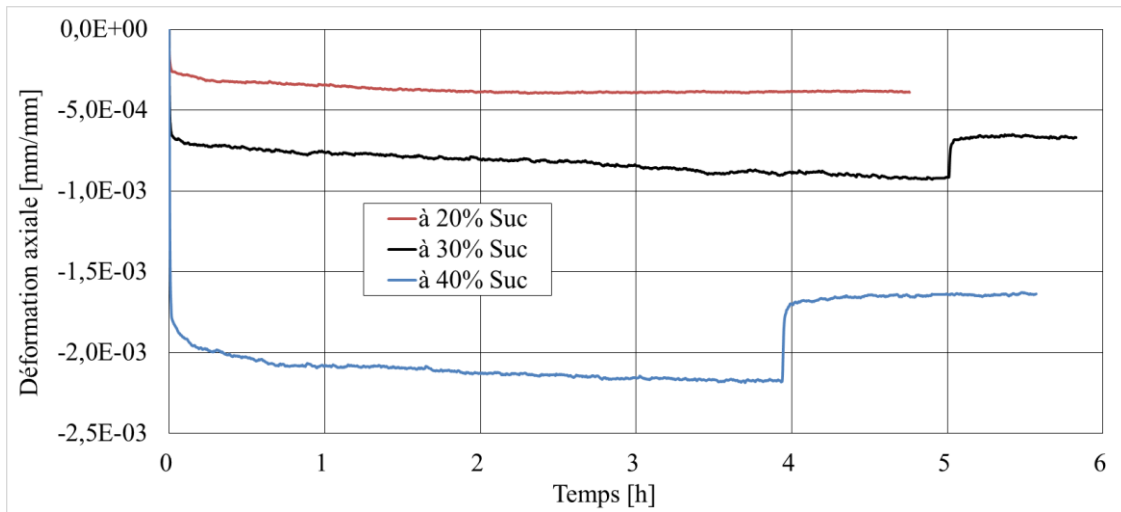


Figure 4.38 : Fluage/recouvrance axial des échantillons d'anode de carbone crus testés à 180°C.



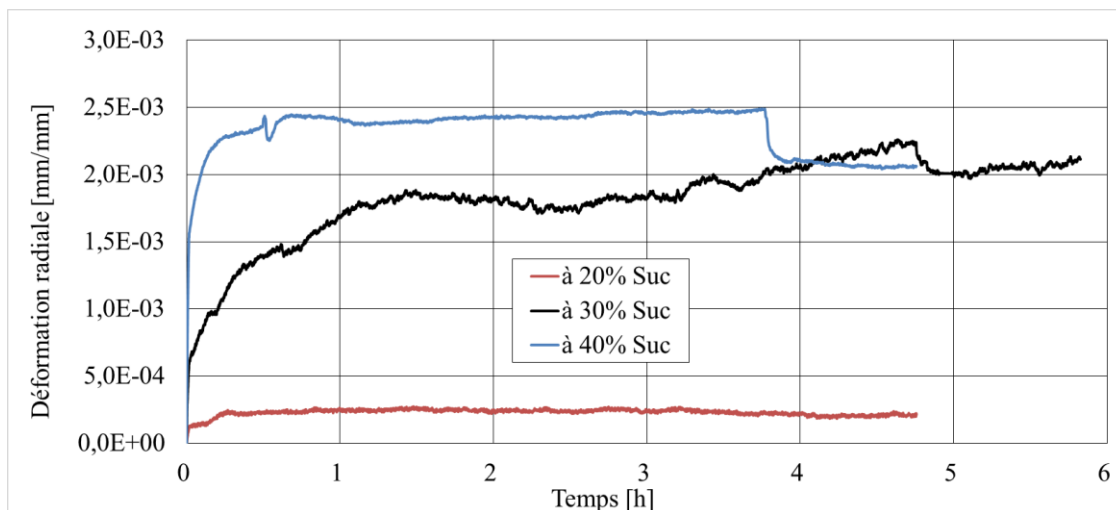


Figure 4.39 : Fluage/recouvrance radial des échantillons d'anode de carbone crus testés à 180°C.

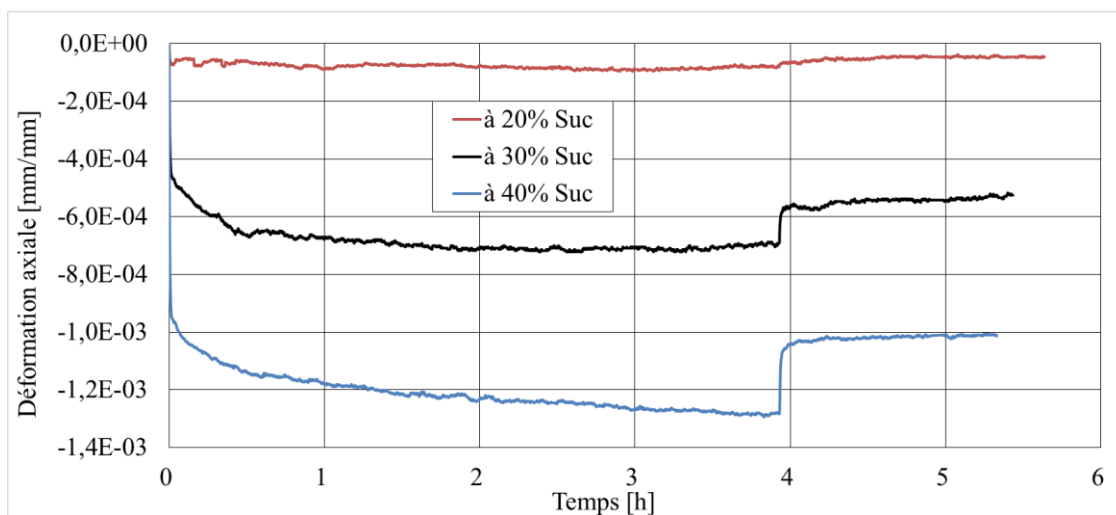


Figure 4.40 : Fluage/recouvrance axial des échantillons d'anode de carbone crus testés à 230°C.

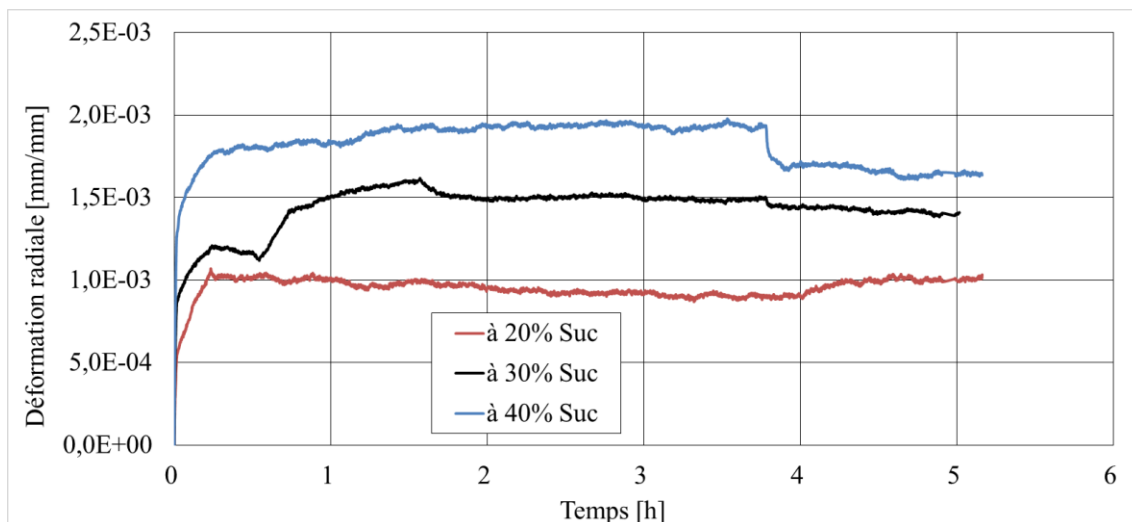


Figure 4.41 : Fluage/recouvrance radial des échantillons d'anode de carbone crus testés à 230°C.

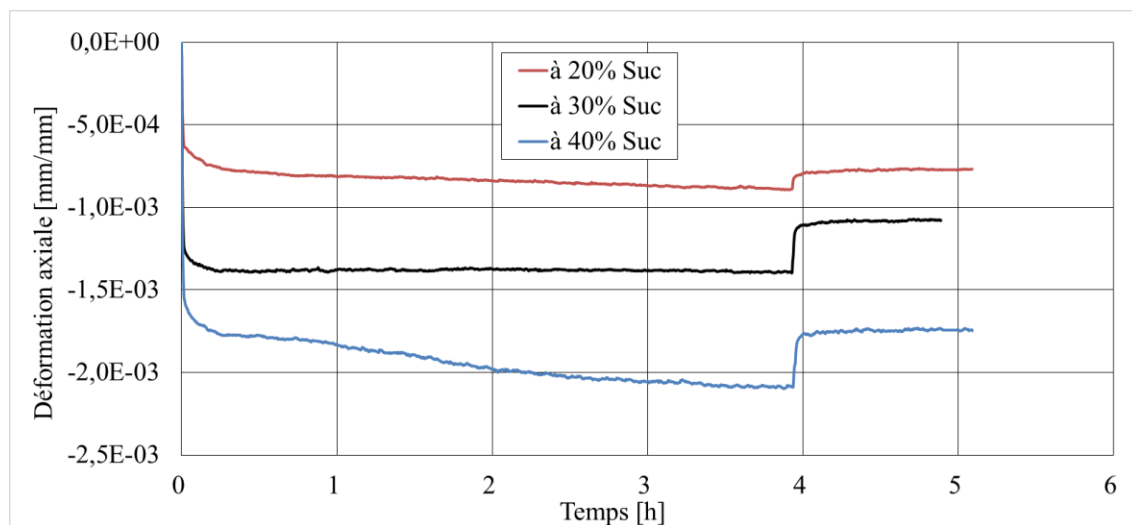


Figure 4.42 : Fluage/recouvrance axial des échantillons d'anode de carbone cuits à 300°C testés à 250°C.

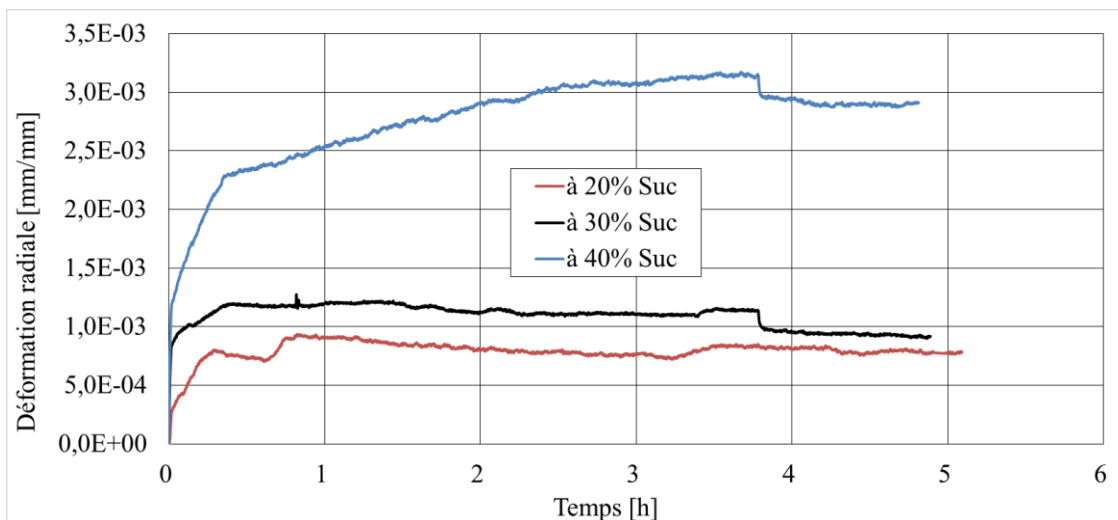


Figure 4.43 : Fluage/recouvrance radial des échantillons d'anode de carbone cuits à 300°C testés à 250°C.

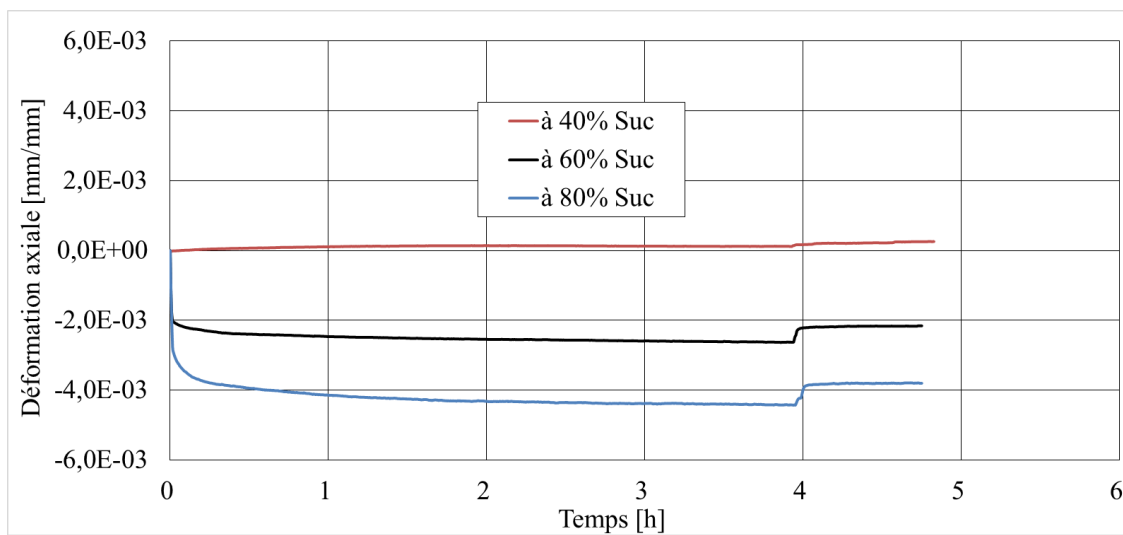


Figure 4.44 : Fluage/recouvrance axiale des échantillons d'anode de carbone cuits à 400°C testés à 250°C.

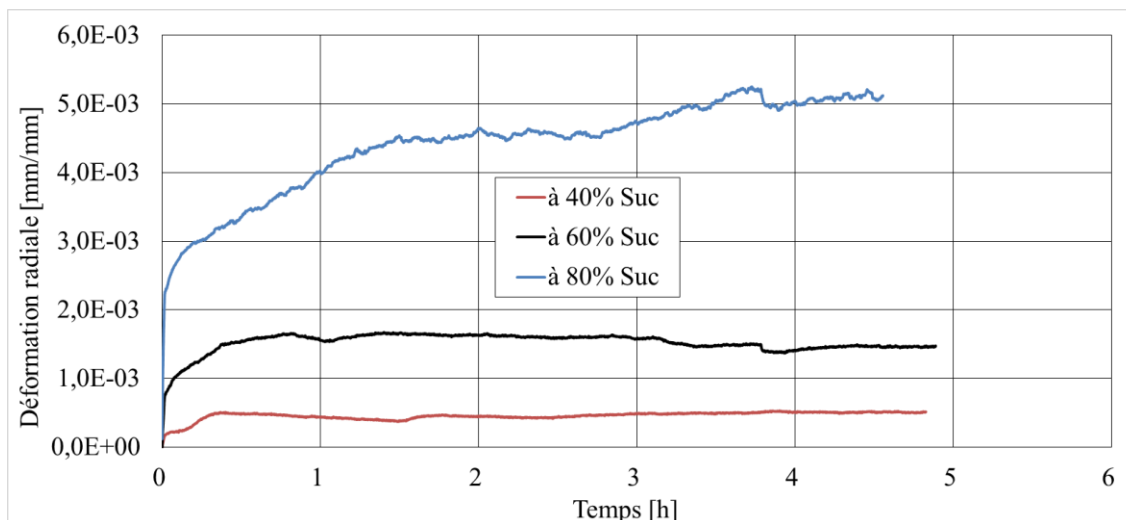


Figure 4.45 : Fluage/recouvrance radial des échantillons d'anode de carbone cuits à 400°C testés à 250°C.

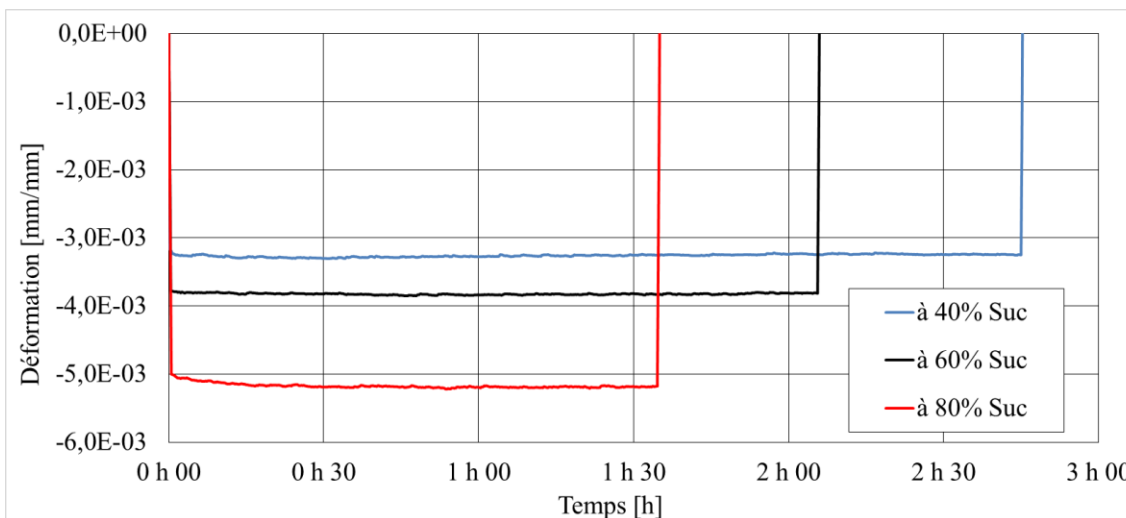


Figure 4.46 : Fluage/recouvrance axial des échantillons d'anode de carbone cuits à 500°C testés à 250°C.

Afin d'observer l'impact de la température, les résultats d'essais de fluage avec recouvrance réalisés aux différentes températures sont regroupés sur la figure 4.47 et ce, pour un même niveau de contrainte, soit 40% de  $S_{uc}$ .

L'évolution de la déformation totale mesurée en fonction du niveau de cuisson est identifiée dans les deux directions axiales et radiales lors des essais de fluage à TA et à haute température (figure 4.47) telle que  $\varepsilon_{tot} = \varepsilon_e + \varepsilon_{ve} + \varepsilon_{vp}$  (figure 4.33). D'autre part, les résultats de la figure 4.47 sont analysés en fonction de la déformation récupérée  $\varepsilon_{rec} = \varepsilon_{tot} - \varepsilon_{vp} = \varepsilon_e + \varepsilon_{ve}$  (figure 4.48). La figure 4.48 montre le pourcentage de la déformation récupérée lors de la recouvrance en fonction de la température de cuisson après l'essai de fluage et ce, pour les valeurs de contraintes de 40%  $S_{uc}$  définies pour chaque essai. Tout d'abord, la déformation récupérée  $\varepsilon_{rec}$  (dans les deux directions axiales et radiales) est jugée importante avec une valeur de 85.93% de la déformation totale  $\varepsilon_{tot}$  à l'état cru. Par la suite, elle diminue considérablement de presque le tiers à 120°C pour rester relativement stable jusqu'à 400°C où elle devient négligeable, avant de remonter pour se stabiliser à 100% à 500°C jusqu'à la fin de la cuisson. Au-delà d'une température de cuisson de 500°C, seule la déformation élastique  $\varepsilon_e$  figure pour les échantillons d'anode de carbone.

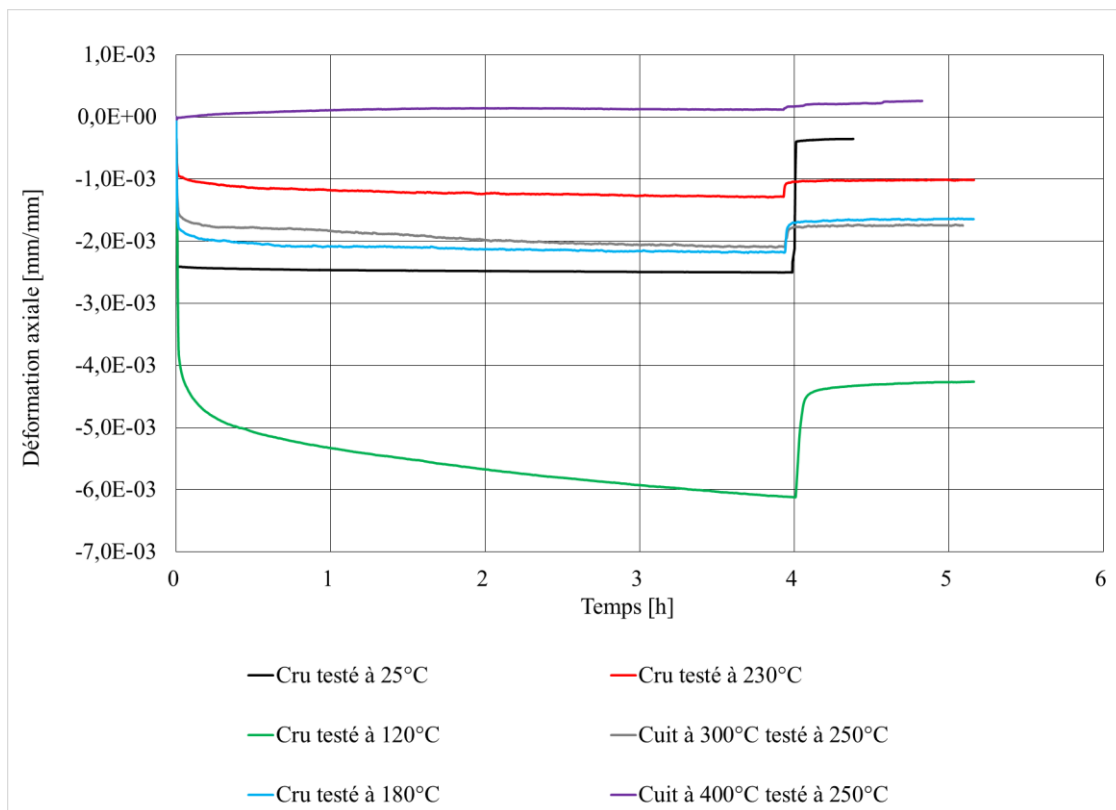


Figure 4.47 : Évolution fluage/recouvre axiale en fonction de la température à 40%  $S_{uc}$ .

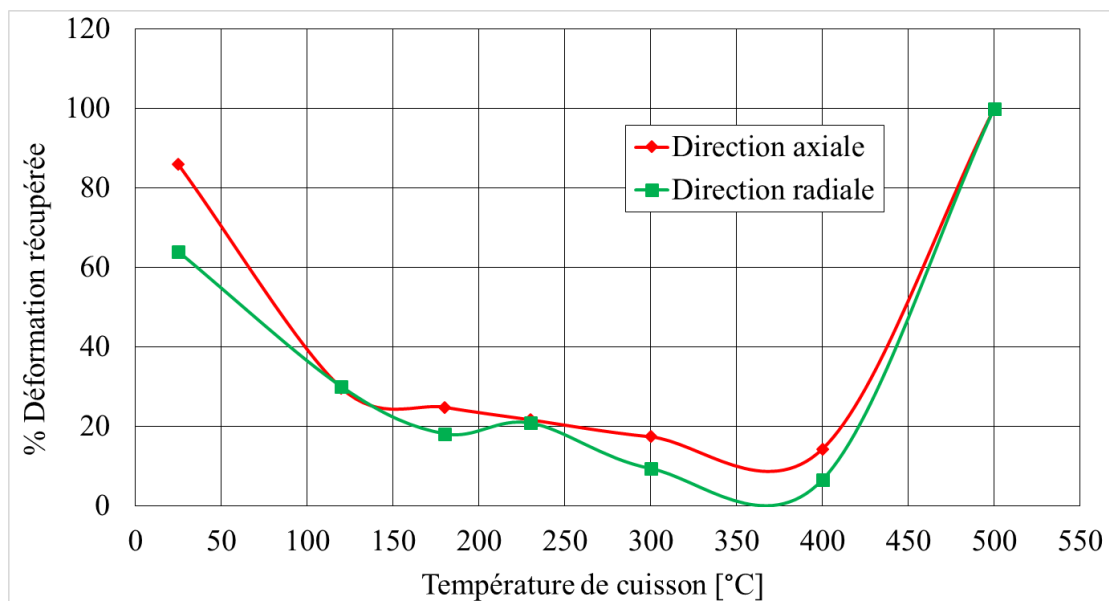


Figure 4.48 : Pourcentage de la déformation récupérée lors de la recouvrance en fonction de la température de cuisson.

#### 4.4.3 Non-linéarité du comportement visqueux

Un autre aspect important qui a été observé est la non-linéarité des mécanismes de déformation visqueuse. Lorsque le fluage n'est pas linéaire en fonction de la contrainte appliquée, donc on est dans la non-linéarité. En d'autre terme, si les courbes de déformation spécifique en fluage ( $\varepsilon_{sf}$ ) ne se coïncident pas, alors le comportement visqueux est non-linéaire [62]. La déformation spécifique en fluage  $\varepsilon_{sf}$  est définie comme étant le rapport entre la déformation axiale mesurée ( $\varepsilon_a$ ) et la contrainte axiale appliquée ( $\sigma_a$ ):

$$\varepsilon_{sf} = \frac{\varepsilon_a}{\sigma_a} \quad (4. 19)$$

Conséquent des essais de fluage réalisés, la déformation spécifique en fluage  $\varepsilon_{sf}$  en fonction du temps a pu être déterminée. Les figures 4.49 à 4.53 montrent des exemples de l'évolution de la non-linéarité du comportement visqueux. Les résultats obtenus montrent que les courbes de déformation spécifique en fluage ne se coïncident pas, d'où la non-linéarité.

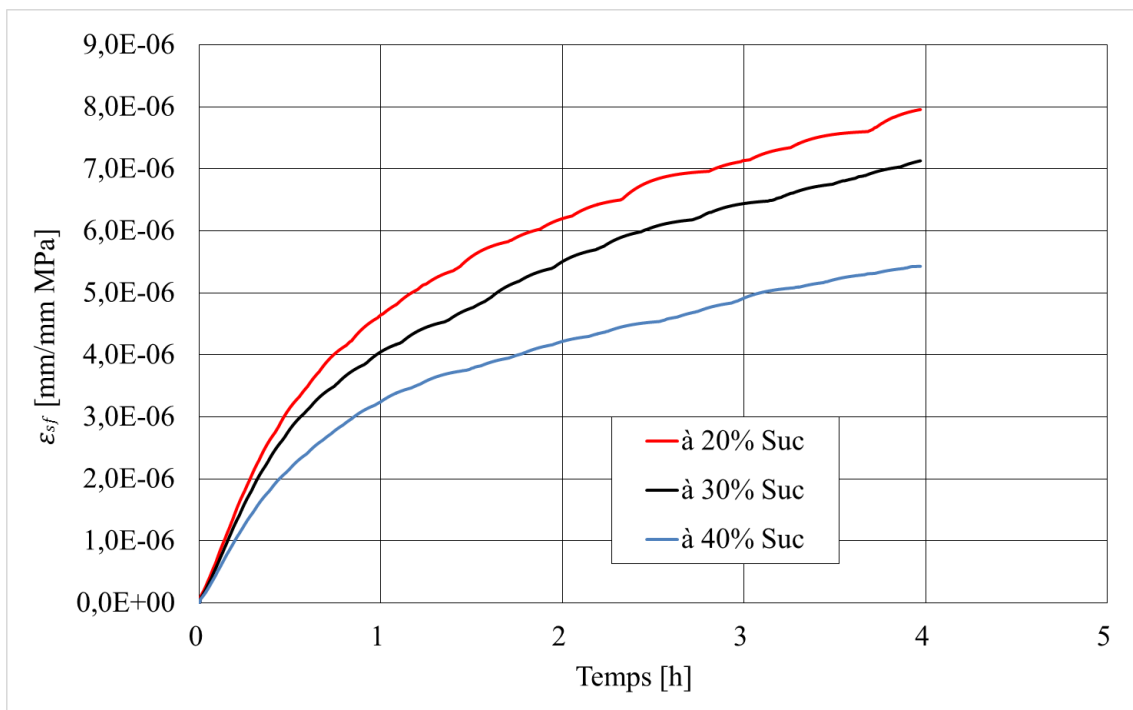


Figure 4.49 : Déformation spécifique en fluage pour des échantillons d'anode de carbone crus testés à TA sous différentes contraintes.

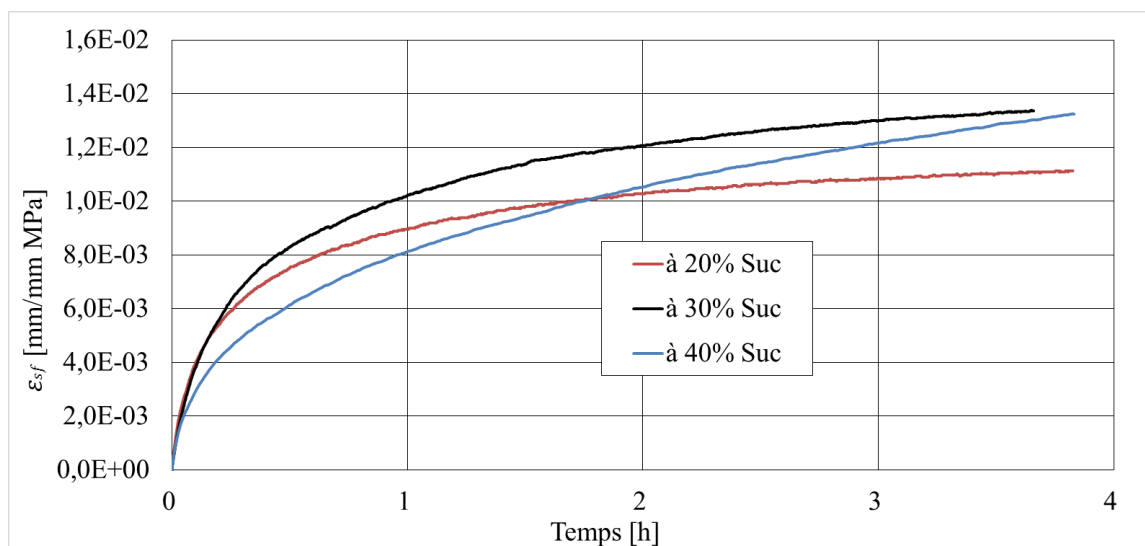


Figure 4.50 : Déformation spécifique en fluage pour des échantillons d'anode de carbone crus testés à 120°C sous différentes contraintes.



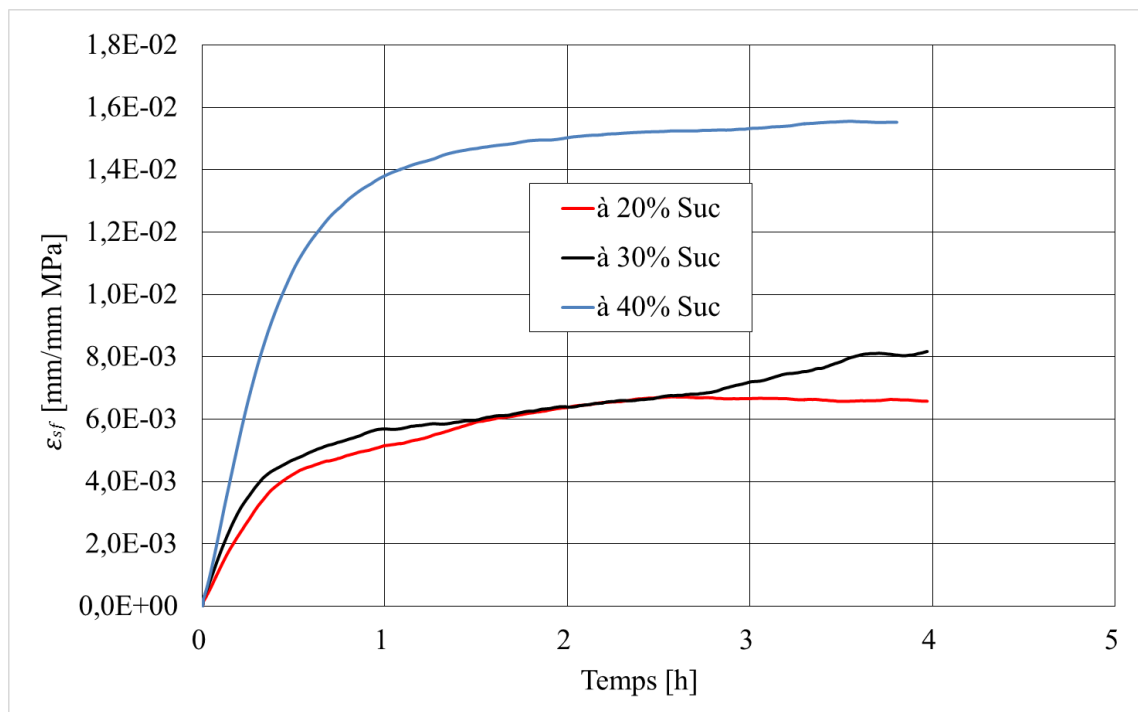


Figure 4.51 : Déformation spécifique en fluage pour des échantillons d'anode de carbone crus testés à 180°C sous différentes contraintes.

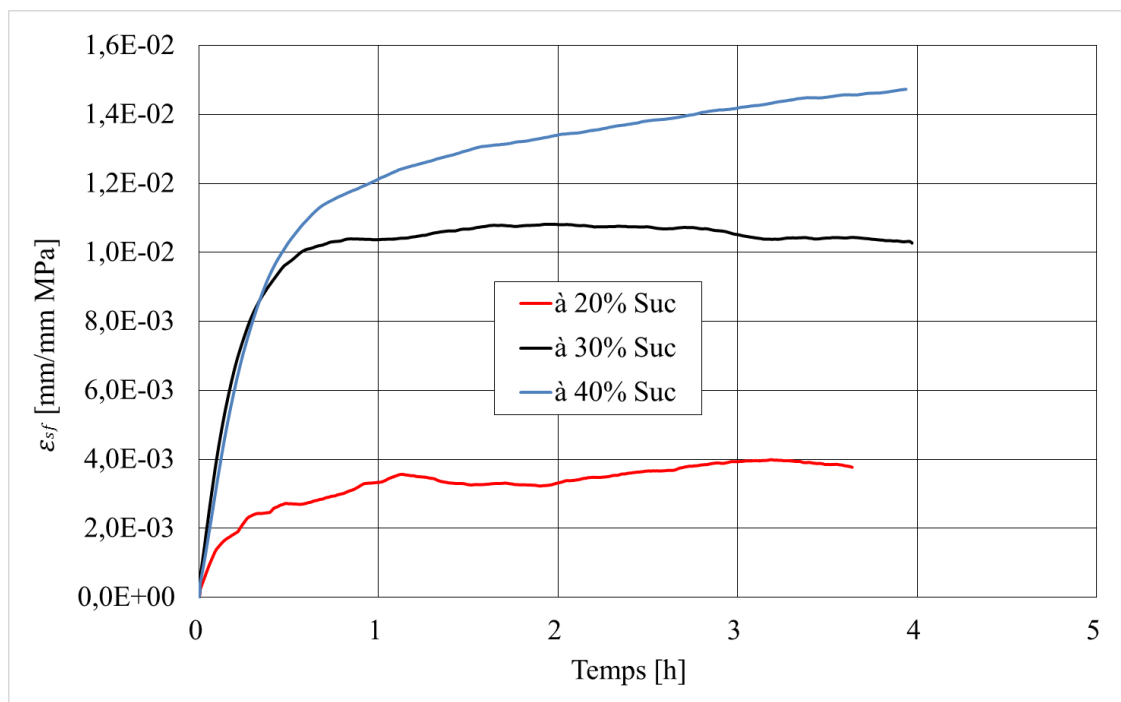


Figure 4.52 : Déformation spécifique en fluage pour des échantillons d'anode de carbone crus testés à 230°C sous différentes contraintes.

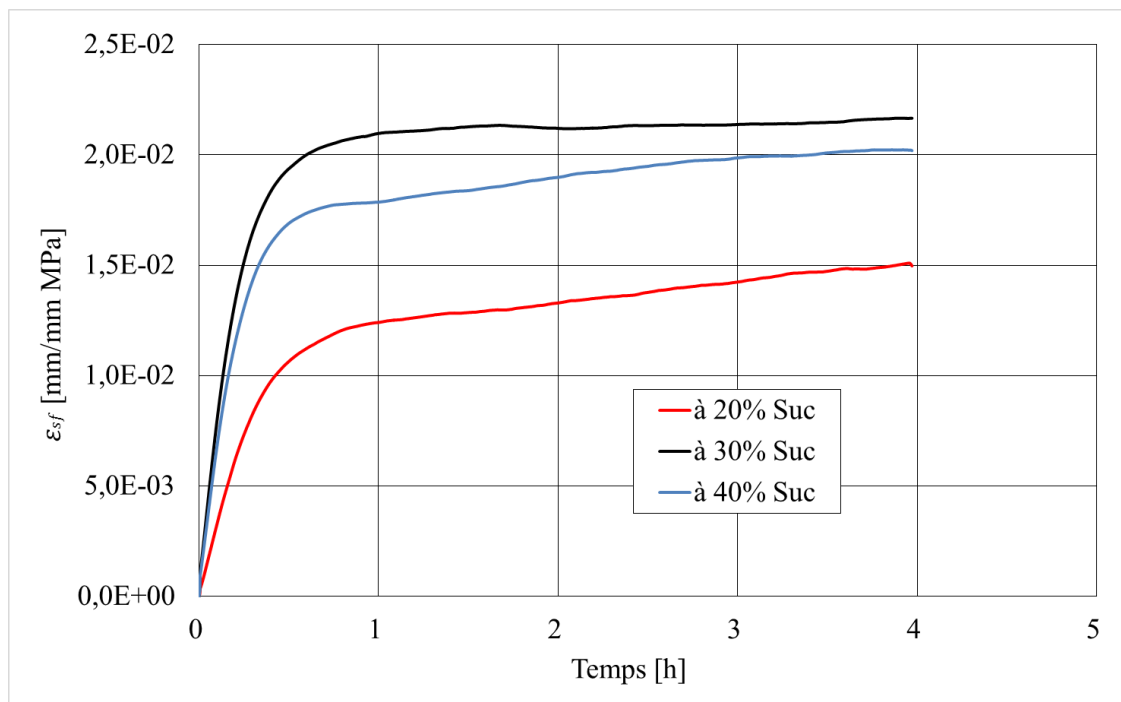


Figure 4.53 : Déformation spécifique en fluage pour des échantillons d'anode de carbone cuits à 300°C et testés à 250°C sous différentes contraintes.

## 4.5 Sommaire

Dans ce chapitre, une caractérisation thermochimique a été réalisée via des essais de dilatométrie. Ceci a permis de définir les niveaux de dilatation/contraction thermique et chimique de l'anode de carbone durant la cuisson. Par la suite, une analyse par thermogravimétrie a été effectuée, ce qui a permis d'identifier la température des essais à chaud.

D'autre part, une analyse détaillée du comportement thermomécanique de l'anode a été effectuée. Des essais de compression uniaxiale à différentes températures ont été réalisés sur des échantillons cuits à différents niveaux ce qui a permis d'identifier l'évolution des propriétés élastiques de l'anode pendant la cuisson. De plus, des essais de compression triaxiale ont été réalisés à TA et ce, afin de caractériser l'enveloppe de

rupture de l'anode. En raison de l'impossibilité d'effectuer des essais triaxiaux à chaud par manque d'équipement adéquat, une hypothèse a été proposée et aura permis de caractériser la résistance en compression triaxial à chaud en fonction du niveau de confinement. Les résultats obtenus auront également permis de tracer l'enveloppe de rupture du matériau selon le critère de Mohr-Coulomb.

Par la suite, une caractérisation du comportement visqueux a été réalisée. Les résultats obtenus ont montré clairement l'existence du fluage. Ce mécanisme de déformation fut observé dans la direction axiale et radiale, surtout à des températures pour lesquelles l'anode est encore molle (entre 120°C et 400°C). Au-delà de 500°C, le fluage ne s'est pas manifesté et ce, en raison de la cokéfaction du brai. La présence de déformation permanente lors du fluage a pu être confirmée par la recouvrance. Finalement, l'évolution de la déformation spécifique en fluage montre clairement que le fluage de l'anode de carbone est non linéaire.

## Chapitre 5

### Conclusion et recommandations

#### 5.1 Rétrospective

La production d'anode de qualité passe nécessairement par la bonne compréhension des différents phénomènes d'origine chimique, thermique et mécanique pouvant affecter la structure de la pâte de carbone lors de sa cuisson. Réalisé dans le cadre des activités de la Chaire de recherche industrielle UQAC/AAI sur le carbone, ce mémoire de maîtrise porte une attention toute particulière à la bonne compréhension du comportement thermo-chimio-mécanique des anodes de carbone en phase de cuisson. Pour se faire, on a procédé à une importante campagne de caractérisation permettant de quantifier l'évolution des propriétés de la pâte de carbone et ce, allant de l'état cru à l'état totalement cuit.

Tout d'abord, une synthèse bibliographique exhaustive a été réalisée. Peu de travaux étudiant l'évolution des propriétés thermochimiques, thermomécaniques et visqueuses ont été réalisés sur les anodes de carbone pendant leur phase de cuisson. En effet, la plupart des travaux ont été réalisés sur des matériaux ayant une structure similaire aux anodes tels que la pâte monolithique et d'autres matériaux à base de carbone.

L'étape de caractérisation thermochimique fut réalisée en deux parties. La première partie fut dédiée aux essais de dilatométrie afin de quantifier l'évolution des mécanismes de déformation d'origine thermique et chimique lors de la cuisson de la pâte

de carbone. La deuxième partie fut consacrée aux essais de thermogravimétrie, permettant ainsi de quantifier l'évolution de la perte de masse de la pâte de carbone durant la cuisson et ainsi, d'identifier une température critique ( $250^{\circ}\text{C}$ ) pour la réalisation des essais à chaud. En effet, l'utilisation d'une telle température permet d'éviter la reprise des mécanismes réactionnels lors des essais à haute température sur des échantillons préalablement cuits à une température donnée.

Par la suite s'est amorcé le programme de caractérisation thermomécanique. Conséquent des difficultés techniques rencontrées par les travaux antérieurs sur la mesure des propriétés mécaniques à haute température des matériaux à base de carbone, un nouveau montage expérimental a été développé pour la réalisation des essais en compression uniaxiale. Ce montage a permis de mesurer le module d'Young, le coefficient de Poisson ainsi que la résistance ultime à la compression sur toute la plage de température de cuisson, incluant l'intervalle entre  $120^{\circ}\text{C}$  et  $500^{\circ}\text{C}$  sur lequel la pâte de carbone adopte une structure molle. En comparant les résultats avec ceux obtenus à TA, on a remarqué que les résultats sont assez similaires pour une température de cuisson donnée, exception faite pour l'intervalle de température entre  $120^{\circ}\text{C}$  et  $500^{\circ}\text{C}$  sur lequel la résistance ultime à la compression et le module d'Young deviennent très faibles et le coefficient de Poisson approche celui d'un matériau incompressible, soit  $\nu = 0.5$ .

Conséquent de la sensibilité particulière de la pâte de carbone à la pression hydrostatique, une série d'essais de compression en milieu confiné (triaxiaux) a également été réalisée à TA. Sur la base de l'hypothèse que le rapport entre les

résistances en compression triaxiale à chaud et à TA du matériau (cuit à une température donnée) demeure constant pour un niveau de confinement donné, il fut possible de prédire le comportement à haute température du matériau en milieu confiné. Les résultats obtenus montrent une forte dépendance au niveau de confinement et auront également permis d'établir l'enveloppe de rupture en fonction du niveau de cuisson selon le critère de Mohr-Coulomb.

Finalement, le programme de caractérisation thermomécanique s'est conclu par les essais de fluage/recouvrance. Ce genre de mécanisme de déformation a pu être étudié dans les directions axiale et radiale. Le comportement visqueux des anodes s'est manifesté pour des températures de cuisson allant de la TA jusqu'à 400°C, où les phases primaire et secondaire de fluage ont pu être observées. Par la suite, les déformations élastiques, viscoélastiques et viscoplastiques ont été distinguées suite à la recouvrance. Cette recouvrance a permis aussi de déduire qu'en plus des déformations réversibles, des déformations irréversibles (viscoplastiques) ont également été présentes lors de la phase primaire du fluage. On aura également observé une non-linéarité des mécanismes de déformations visqueuses du matériau indiquant que l'amplitude de déformation de la pâte de carbone est dépendante de la charge appliquée. Au-delà de 500°C, le phénomène de fluage fut quasi inexistant en raison de la cokéfaction du brai.

## **5.2 Recommandations**

Nous terminons ce chapitre par quelques recommandations dans le but d'apporter une meilleure orientation aux travaux futurs :

1. Réaliser une étude comparative permettant de mesurer l'impact de certaines caractéristiques du procédé de fabrication sur le comportement thermo-chimio-mécanique de l'anode de carbone pendant la phase de cuisson. On pense notamment à la recette de la pâte, au procédé de vibrocompaction, etc.
2. Réaliser une étude comparative permettant de mesurer l'impact du taux de chauffe sur le comportement thermo-chimio-mécanique de la pâte d'anode pendant la cuisson; sachant que ce taux de chauffe n'est pas constant durant la cuisson.
3. Réaliser des essais de thermogravimétrie sur des échantillons partiellement cuits à des températures supérieures à 400°C, afin de s'assurer davantage que de 250°C est la bonne température (la température de reprise des réactions chimiques, et donc reprise de la cuisson, pour n'importe quel niveau de cuisson partiel) pour tous les essais à chaud réalisés sur des échantillons partiellement cuits.
4. Valider davantage l'hypothèse posée pour la caractérisation à haute température en milieu confiné via la réalisation d'essais à chaud.

5. Identifier un critère de rupture plus représentatif du comportement de l'anode de carbone en cours de cuisson.
6. Procéder à une campagne de caractérisation de la résistance en traction et ce, afin de pouvoir alimenter adéquatement un modèle de rupture cohérent avec cet aspect du comportement.



## Bibliographie

1. M.W. Meier, Cracking : Cracking behaviour of anodes. 1996, Sierre [Suisse]: R&D Carbon. xiii, 364 p.
2. R. Trans-Al, Carte routière technologique canadienne de l'aluminium. 2006, Réseau Trans-Al: Chicoutimi. 1 cédérom.
3. D. Richard, Aspects thermomécaniques de la modélisation par éléments finis du préchauffage électrique d'une cuve de hall-héroult : Lois constitutives, conception orientée-objet et validation. *Québec: Faculté des Sciences et de Génie de l'Université Laval*, 2004.
4. K.L. Hulse, Anode manufacture : Raw materials, formulation and processing parameters. 2000, Sierre [Suisse]: R & D Carbon Ltd. xxxv, 416 p.
5. A.J. Rolf, Measures to improve carbon baking. *Light Metals*, 1992, 739-745.
6. A. Charette, Y.S. Kocaefe, and D. Kocaefe, Le carbone dans l'industrie de l'aluminium. 2012, Chicoutimi (Québec): Les presses de l'aluminium. xxi, 325 p.
7. S. Das, J.A.S. Green, and J. Kaufman, The development of recycle-friendly automotive aluminum alloys. *JOM*, 2007. 59(11), 47-51.
8. S. industries, Fours de cuisson des anodes. [www.skamol.fr/industries/aluminium/applications/fours-de-cuisson-des-anodes](http://www.skamol.fr/industries/aluminium/applications/fours-de-cuisson-des-anodes).
9. S.M. Hume, Anode reactivity : Influence of raw material properties. (*Sierre [Suisse]: R & D Carbon Ltd.*), 1999.

10. J.-C. Fischer, The impact of anode quality on smelter performance. *27th International Aluminium Conference, MetalBulletin Events*, 2012(R&D Carbon, Sierre, Switzerland).
11. S. Amrani, Impact de la préparation des anodes crues et des conditions de cuisson sur la fissuration dans des anodes denses. *Thèse-UQAC*, 2015.
12. F. Keller and P.O. Sulger, Anode baking, baking of anodes for the aluminum industry. *R&D carbone Ltd. 2nd edition*, 2008, 57-58.
13. K. Azari, H. Ammar, H.D. Alamdari, and M. Fafard, Les effets de la formulation de l'anode et des caractéristiques des particules sur la conception de la pâte. *JER-REGAL, PRAC, Les presses de l'aluminium, Québec, Canada*, 2010, 14.
14. R.J. Tosta and E.M. Inzunza, "Structural evaluation of coke of petroleum and coal tar pitch for the elaboration of anodes in the industry of the aluminum". *Paper presented at the TMS Annual Meeting, New Orleans, LA, United States, Light Metals*, 2008, 887-892.
15. G.Lefebvre, Cours de l'école nationale supérieure du pétrole et des moteurs. *Chimie des hydrocarbures, Technip, coll*, 1978, 205.
16. C. Dubuisson, Cinétique de la calcination du coke de pétrole en atmosphère oxydante. *Mémoire de maîtrise, Université du Québec à Chicoutimi*, 1993.
17. A.E. Heintz, The characterization of petroleum coke. *Industry/university, Research centre for biosurface N.Y, Carbon 34 (6)*, 1996, 699-709.

18. K.A. Dorcheh, Investigation of the materials and paste relationships to improve forming process and anode quality. *Ph.D. Thesis, Laval University, Québec, Canada*, 2013.
19. D. Belitskus and D.J. Danka, A comprehensive determination of effects of calcined petroleum coke properties on aluminum reduction cell anode properties. *Paper presented at the TMS Annual Meeting, Light Metals*, 1989, 429-442.
20. R. Farr-Wharton and al., Chemical and electrochemical oxidation of heterogeneous carbon anodes. *Electrochimica Acta*, 25 1980, 217-221.
21. J.W. Newman, K.L. Newman, and A. Kentucky, Pitch. *Encyclopedia of Materials: Science and Technology (Second Edition)*, 2001, 7013-7015.
22. C. Gosselin, Extraction de produits aromatiques des goudrons de houille, opérations unitaires. *Génie de la réaction chimique (technique de l'ingénieur)*, 2000. J5925.
23. C.S.B.Nair, Analysis of coal tar pitches in analytical methods for coal and coal products. *Academic Press*. 2, 1978, 495-533.
24. J.-P. Gagne and al., Anode butts automated visual inspection system. *Paper presented at the TMS Annual Meeting, New Orleans, LA, United States, Light Metals* 2008, 895-898.
25. D. Belitskus, Effect of carbon recycle materials on properties of bench scale prebaked anodes for aluminum smelting. *Metallurgical and Materials Transactions B*, 12, 1981, 135-139.

26. W. K. Fischer and R. C. Perruchoud, Interdependence between properties of anode butts and quality of prebaked anodes. *Paper presented at the TMS Annual Meeting, Warrendale, PA, United States, Light Metals* 1991, 721-724.
27. S.S. Zhuchkov and S.A. Khramenko, Effect of pitch quality on properties of baked anodes. *The second international congress "non ferrous metals-2010, Aluminum reduction technology, Part VI*, 2010, 333-335.
28. K. Azari, H. Alamdari, G. Aryanpour, D. Picard, M. Fafard, and A. Adams, Mixing variables for prebaked anodes used in aluminum production powder technology. 2013, 341–348.
29. <http://www.outotec.com/products/bauxite-alumina-and-aluminum-processing/vibrating-compactor/>.
30. G. D'Amours, Développement de lois constitutives thermomécaniques pour les matériaux à base de carbone lors du préchauffage d'une cuve d'électrolyse, 2004, *Université Laval*, Québec, Canada.
31. N.Bouchard, Pyrolyse de divers brais utilisés dans la technologie söderberg et analyse des matières volatiles. *Mémoire de maîtrise, UQAC*, 1998.
32. Y. Lu, Effect of pitch properties on anode properties. *Mémoire de maîtrise, Université du Québec à Chicoutimi*, Juin 2016.
33. B.M. Faaness, H. Gran, and M. Sørli, Ramming paste related failures in cathode linings. *Light Metals* 1989.
34. M. Serlie and H.A. Øye, Laboratory testing of carbon cathode materials at operational temperatures, in *Light metals* 1989, Paul G. Campbell, Editor.

35. T.F. Juraj Chmelar, Hrald A.Oye, Thermal dilation of green anodes during baking. *Light Metals* 2006.
36. J. Chmelar, Size reduction and specification of granular petrol coke with respect to chemical and physical properties. *PH.D. Thesis*, 2006.
37. D. Kocaefe, Y. Xie, Y. Kocaefe, L. Wei, S. Zou, and A. Wu, Thermogravimetric study on devolatilization kinetics of chinalco anodes during baking. *Journal of Materials Science Research*, 2013.
38. D.H. Andersen and Z.L.Zhang, Fracture and physical properties of carbon anodes for the aluminum reduction cell. *Engineering Fracture Mechanics*, 2011.
39. P.-O. St-Arnaud, D.Picard, H. Alamdari, D. Ziegler, and M. Fafard, Creep behaviour of ramming paste baked at different temperatures and tested at room temperature. *TMS Conference, Light Metals, San Diego*, 2014.
40. O.Sakineh, D.A. Houshang, and M.Fafard, Time-dependant behaviour of ramming paste used in hall-héroult cell: Characterization and constitutive law 2014, Université Laval.
41. G. Info, Triaxial test <http://www.geotechdata.info/geotest/triaxial-test.html>.
42. G. D'Amours, M. Fafard, A. Gakwaya, and A. A.Mirchi, Mechanical behaviour of carbon cathode : Understanding, modeling and identification. *Light metals*, 2003.
43. T.H. Tan, Effects of triaxial stress on concrete. *30th Conference on our world in concrete & structures*, 2005. Nanyang Technological University, Singapore

44. B.Allard and D.Dumas, High temperature high mechanical behaviour of carbon materials used in aluminium smelters. *Light metals*, 1995.
45. F. Delhomme, Étude du comportement à long terme et à la fatigue de systèmes d'ancrage de pièces métalliques dans le béton. 2009(Laboratoire LGCIE – Site Coulomb 2).
46. [http://help.solidworks.com/2013/french/solidworks/cworks/c\\_creep\\_model.htm](http://help.solidworks.com/2013/french/solidworks/cworks/c_creep_model.htm).
47. D.L. Eaton and D.L. Allen, Results of creep tests on concrete cylinders for the cable-stayed bridge at owensboro, kentucky. *Kentucky Transportation Center*, 2000.
48. ASTM and D5502-00, Standard test method for apparent density by physical measurements of manufactured anode and cathode carbon used by the aluminum industry. *ASTM international*, 2010.
49. ASTM and D6120-97, Standard test method for electrical resistivity of anode and cathode carbon material at room temperature *ASTM international*, 2007.
50. <https://fr.tek.com/keithley-switching-and-data-acquisition-systems/keithley-2700-multimeter-data-acquisition-switch-sys>.
51. W. Kallel, D. Marceau, D. Kocafe, P-L.Girard, D. Racine, and P. Coulombe, Evolution of mechanical properties of carbon anodes during baking. *ICSOPA*, 2016.
52. D. Racine, D. Lukovnikov, D. Marceau, and D. Laroche, Innovative procedure for the characterisation of therno-mechanical propreties of carbon base materials using the gleeble® 3800 system. *Light metals*, 2015.

53. A. International, P.B.C. B.H.D., W. Conshohocken, and U.S. PA 19428-2959, ASTM C469/C469M – 10, , Standard test method for static modulus of elasticity and poisson's ratio of concrete in compression. 2010.
54. B.H.D. ASTM International, PO Box C700, West Conshohocken, PA 19428-2959, United States, Standard test method for triaxial compressive strength of undrained rock core specimens without pore pressure measurements. 2005. ASTM D 2664 – 95a.
55. A. International, B.H. Drive, P.B. C700, W. Conshohocken, and U.S. PA 19428-2959, Standard test method for creep of concrete in compression. *ASTM international*, 2012.
56. D. Racine, D. Lukovnikov, D. Marceau, and D. Laroche, Innovative procedure for the characterisation of thermo-mechanical properties of carbon base materials using the gleeble® 3800 system. *Light metals*, 2015, 1169-1173.
57. R.H.G. Parry, Mohr circles, stress paths and geotechnics. 2005. Second Edition.
58. N.C. Consoli and al., Mohr–coulomb failure envelopes of lime-treated soils. *Géotechnique* 64, No. 2, 2014, 165–170.
59. X. Lu, Uniaxial and triaxial behavior of high strength concrete with and without steel fibers. *Faculty of New Jersey Institute of Technology*, 2005.
60. U.o. Waterloo, D.o. Civil, and Engineering, Cive 353 - geotechnical engineering i shear strength of soils (triaxial test). 2006.
61. A. Bazergui, Résistance des matériaux. 3e éd. ed. 2002, Montréal: Presses internationales Polytechnique. xv, 715 p.

62. D. Picard, M. Fafard, G. Soucy, and J.-F. Bilodeau, Room temperature long-term creep/relaxation behaviour of carbon cathode material. *Materials science and engineering* 2008.



## Annexes

### A - Essais de compression uniaxiale à TA sur des échantillons d'anode de carbone crus et cuits à différentes températures

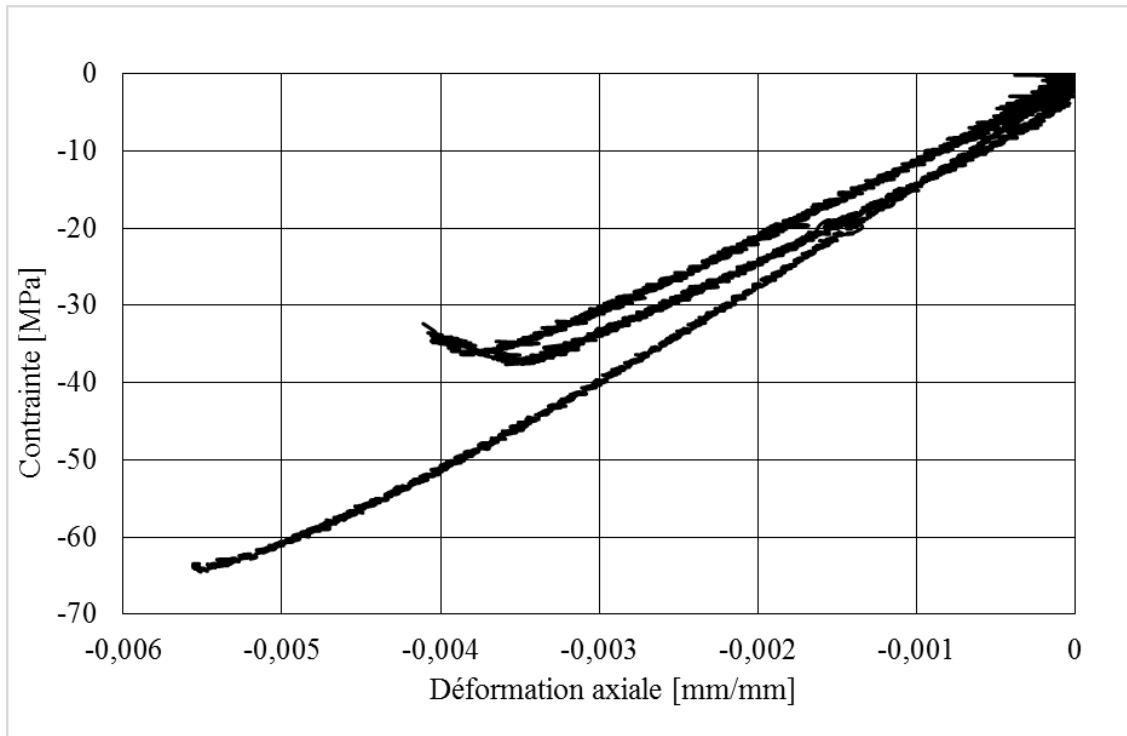


Figure A.1 : Courbes contrainte vs déformation axiale tracées à partir des essais de compression uniaxiale à TA sur des échantillons d'anode de carbone crus.

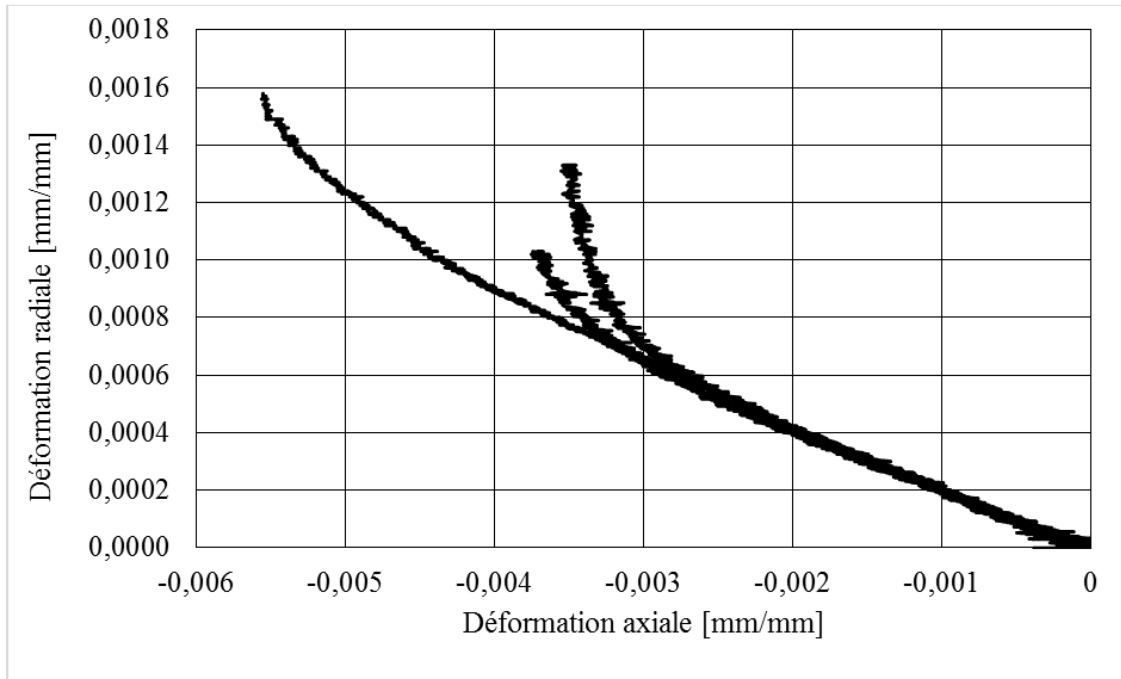


Figure A.2 : Courbes déformation radiale vs déformation axiale tracées à partir des essais de compression uniaxiale à TA sur des échantillons d'anode de carbone crus

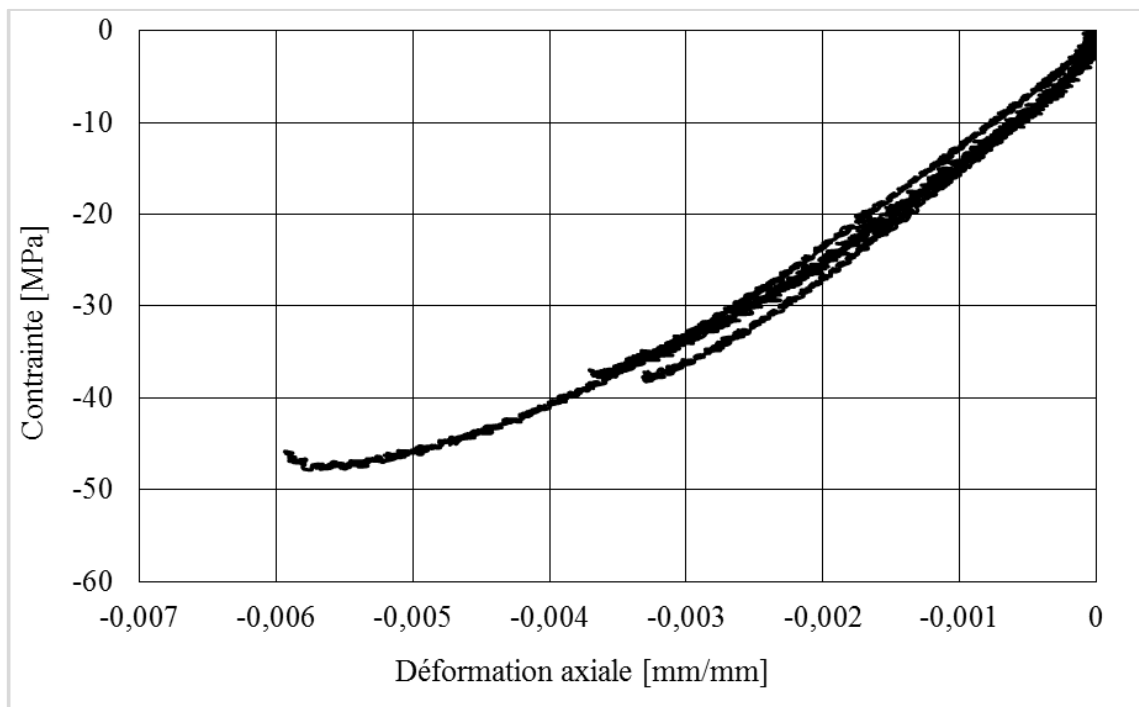


Figure A.3 : Courbes contrainte vs déformation axiale tracées à partir des essais de compression uniaxiale à TA sur des échantillons d'anode de carbone cuits à 300°C.

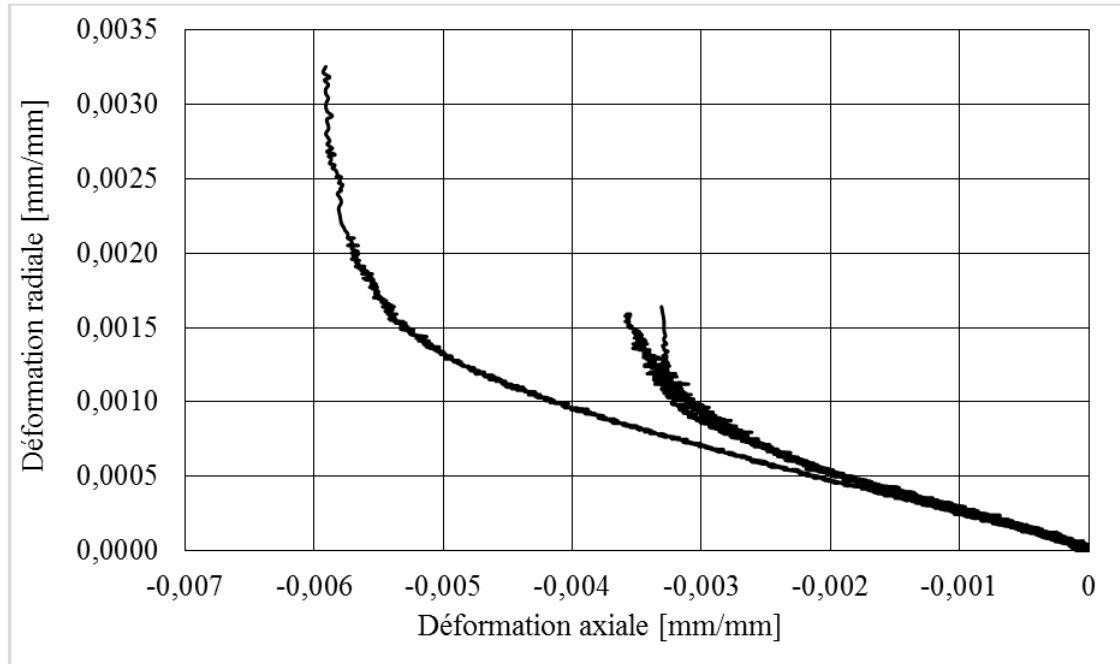


Figure A.4 : Courbes déformation radiale vs déformation axiale tracées à partir des essais de compression uniaxiale à TA sur des échantillons d'anode de carbone cuits à 300°C.

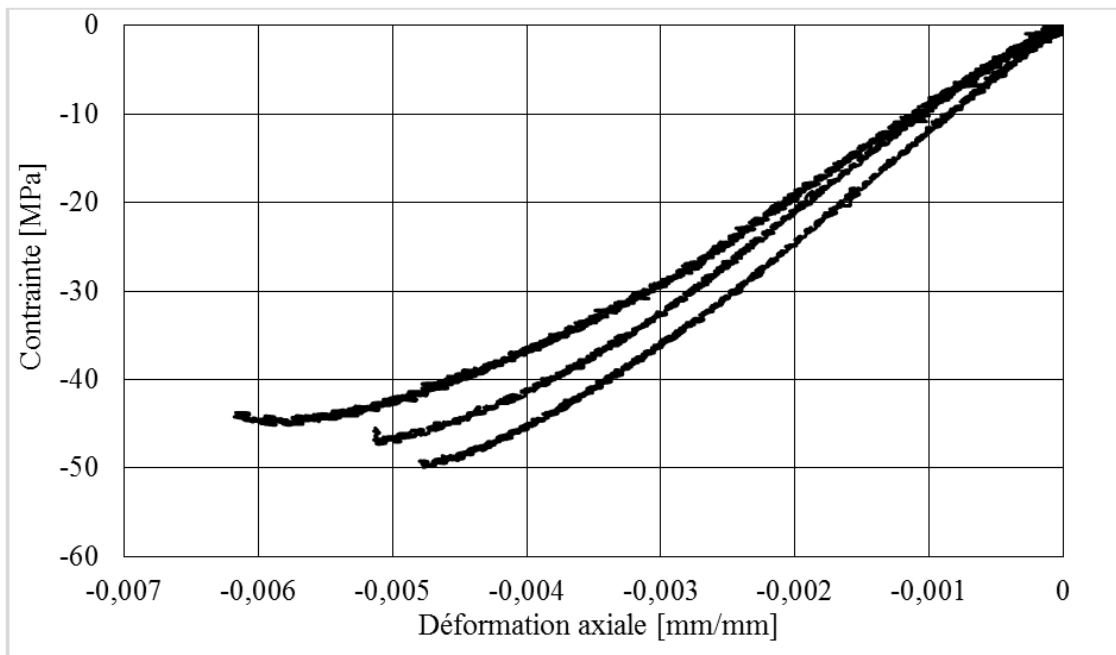


Figure A.5 : Courbes contrainte vs déformation axiale tracées à partir des essais de compression uniaxiale à TA sur des échantillons d'anode de carbone cuits à 400°C.

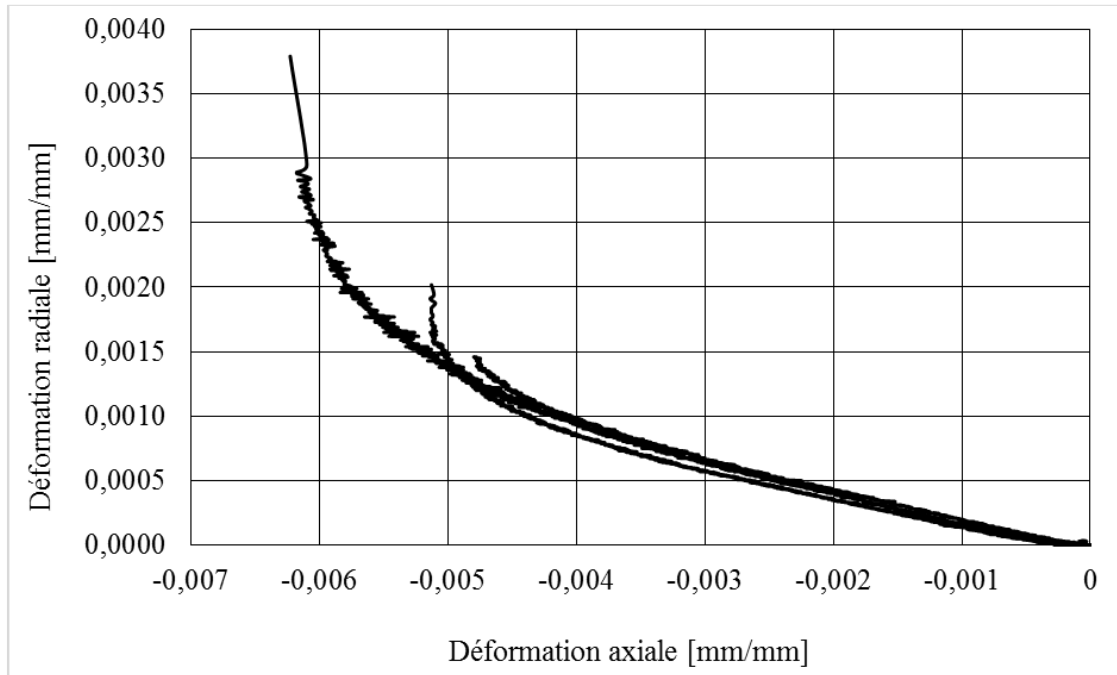


Figure A.6 : Courbes déformation radiale vs déformation axiale tracées à partir des essais de compression uniaxiale à TA sur des échantillons d'anode de carbone cuits à 400°C.

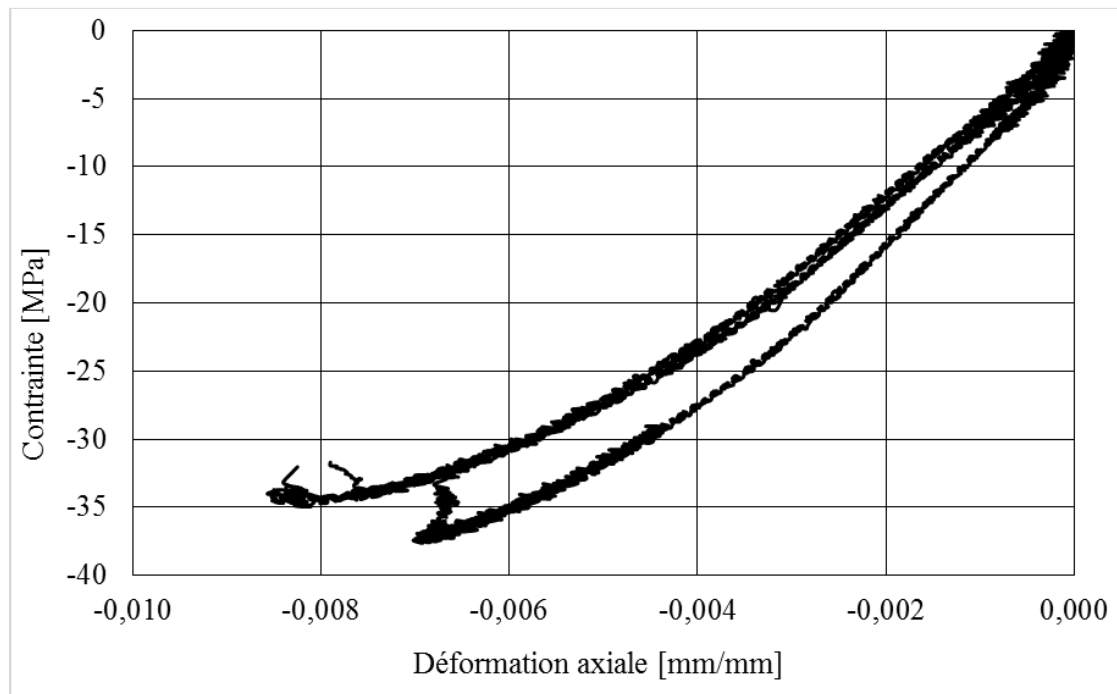


Figure A.7 : Courbes contrainte vs déformation axiale tracées à partir des essais de compression uniaxiale à TA sur des échantillons d'anode de carbone cuits à 500°C.

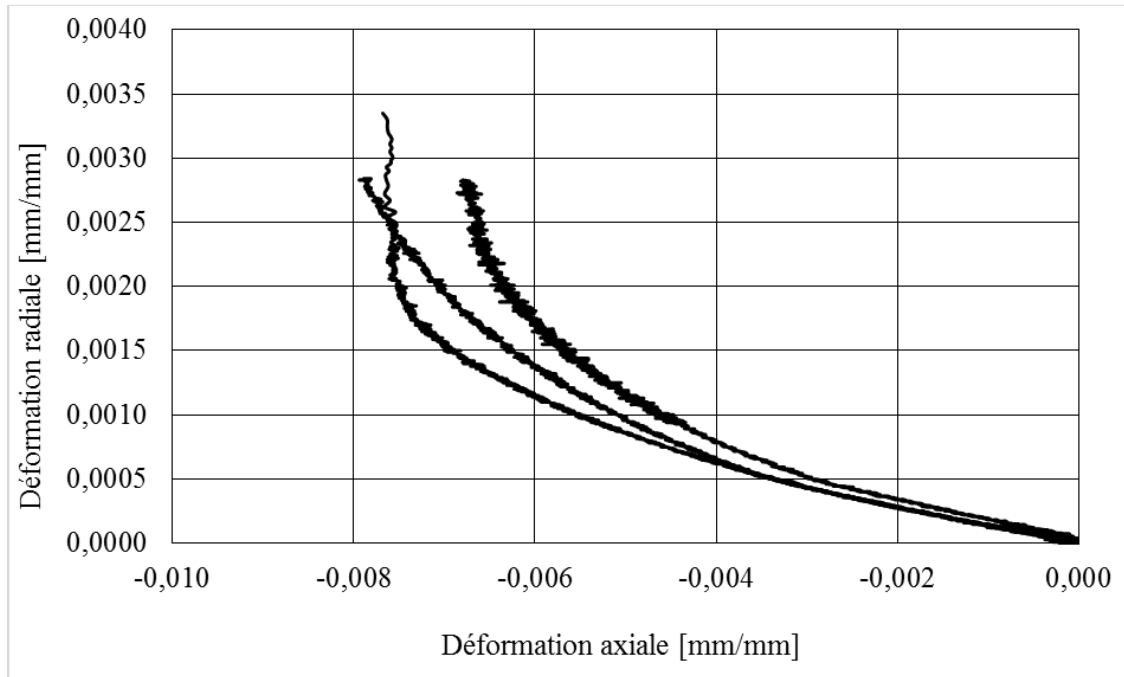


Figure A.8 : Courbes déformation radiale vs déformation axiale tracées à partir des essais de compression uniaxiale à TA sur des échantillons d'anode de carbone cuits à 500°C.

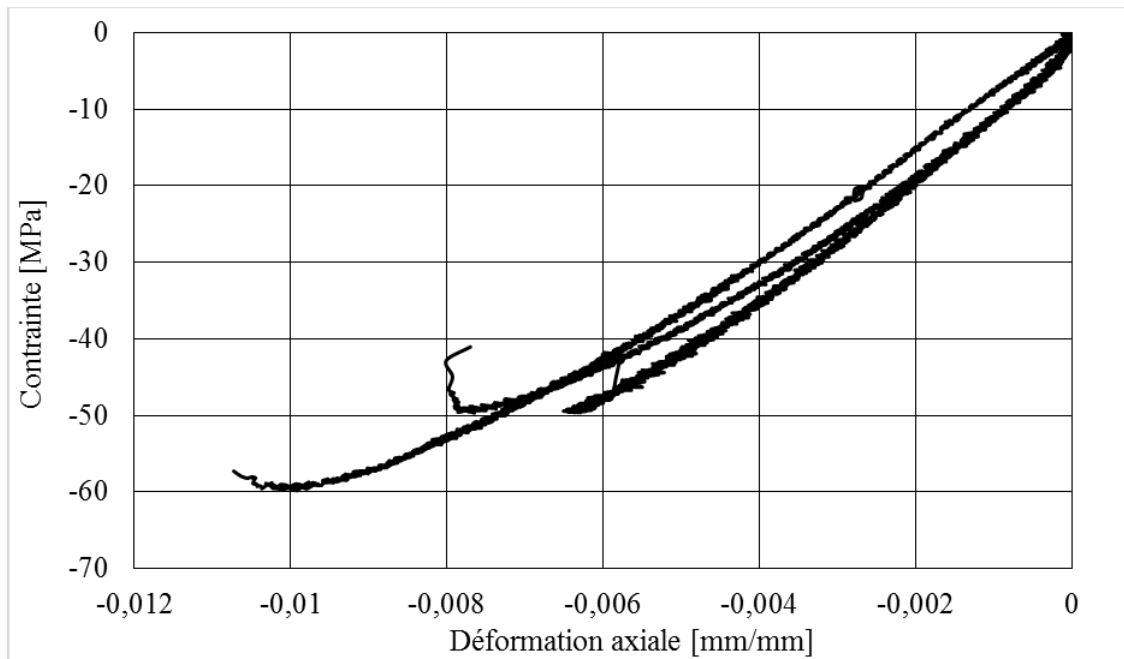


Figure A.9 : Courbes contrainte vs déformation axiale tracées à partir des essais de compression uniaxiale à TA sur des échantillons d'anode de carbone cuits à 600°C.

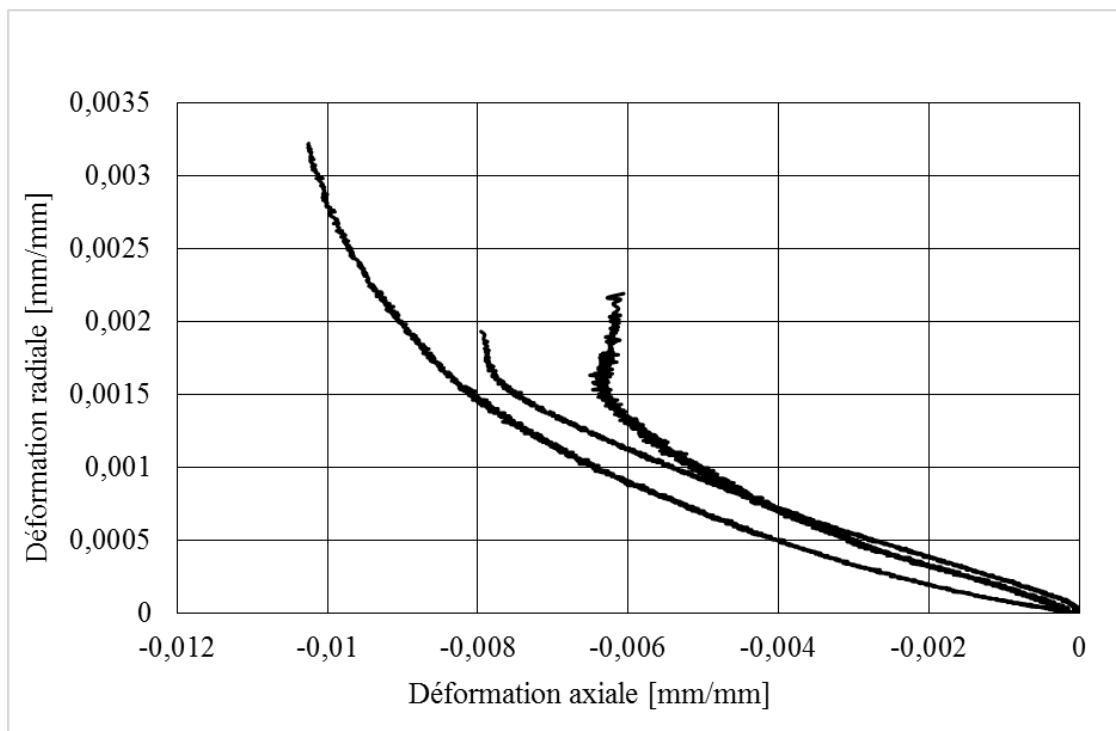


Figure A.10 : Courbes déformation radiale vs déformation axiale tracées à partir des essais de compression uniaxiale à TA sur des échantillons d'anode de carbone cuits à 600°C.

**B - Essais de compression uniaxiale à 180°C sur des échantillons d'anode de carbone crus**

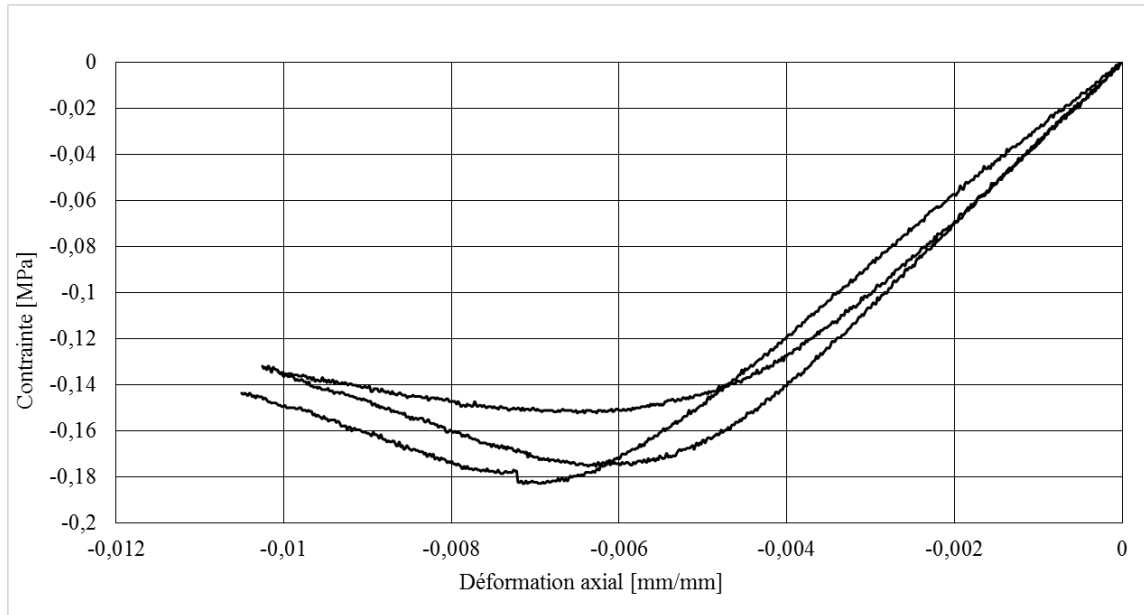


Figure A.11 : Courbes contrainte vs déformation axiale tracées à partir des essais de compression uniaxiale à 180°C sur des échantillons d'anode de carbone crus.

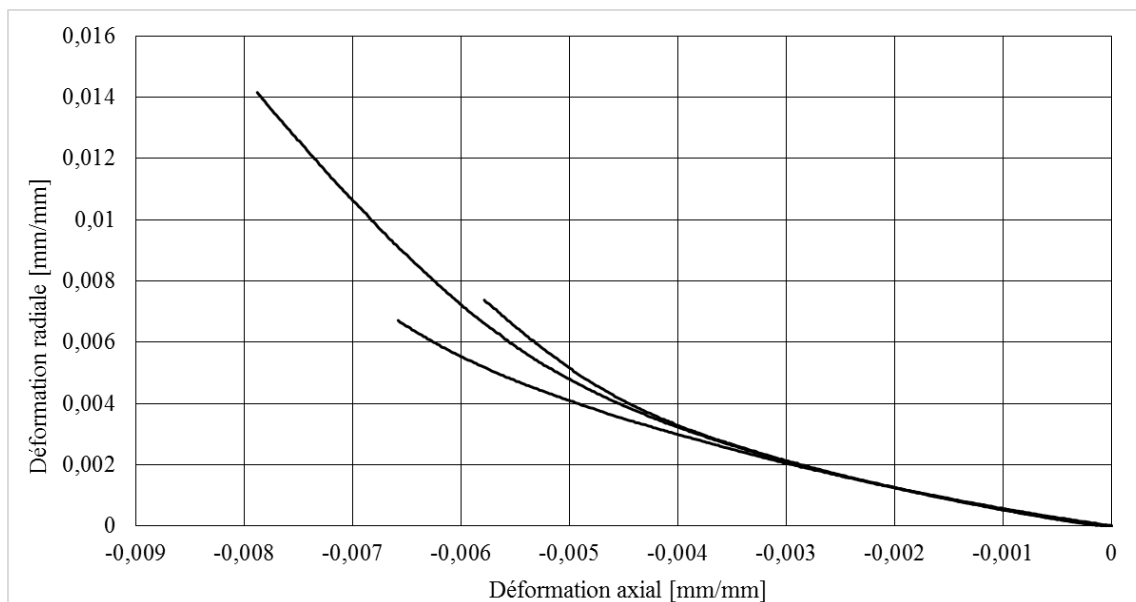


Figure A.12 : Courbes déformation radiale vs déformation axiale tracées à partir des essais de compression uniaxiale à 180°C sur des échantillons d'anode de carbone crus.

### C - Essais de compression uniaxiale à 230°C sur des échantillons d'anode de carbone crus

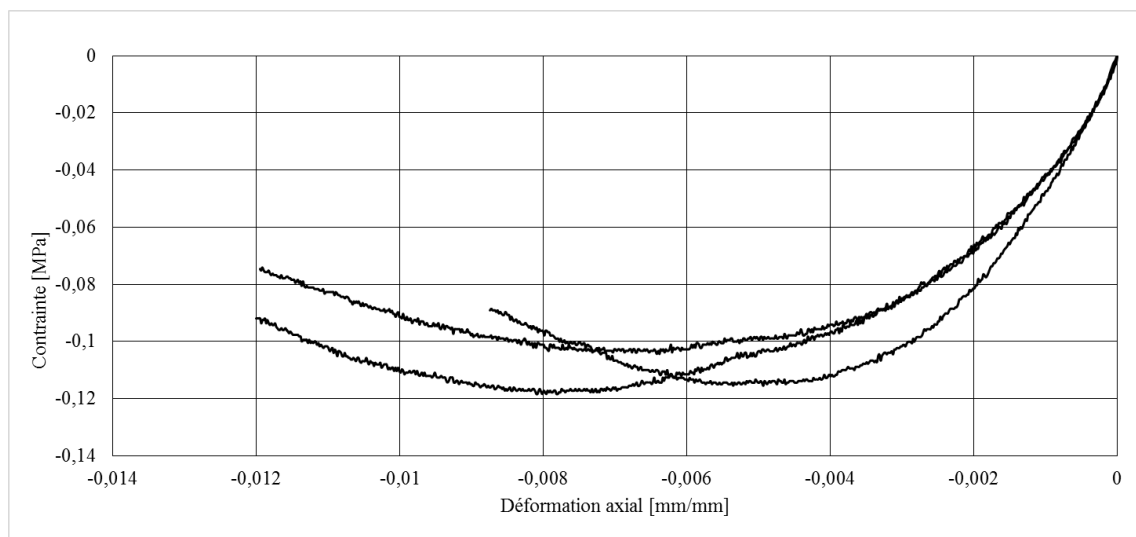


Figure A.13 : Courbes contrainte vs déformation axiale tracées à partir des essais de compression uniaxiale à 230°C sur des échantillons d'anode de carbone crus.



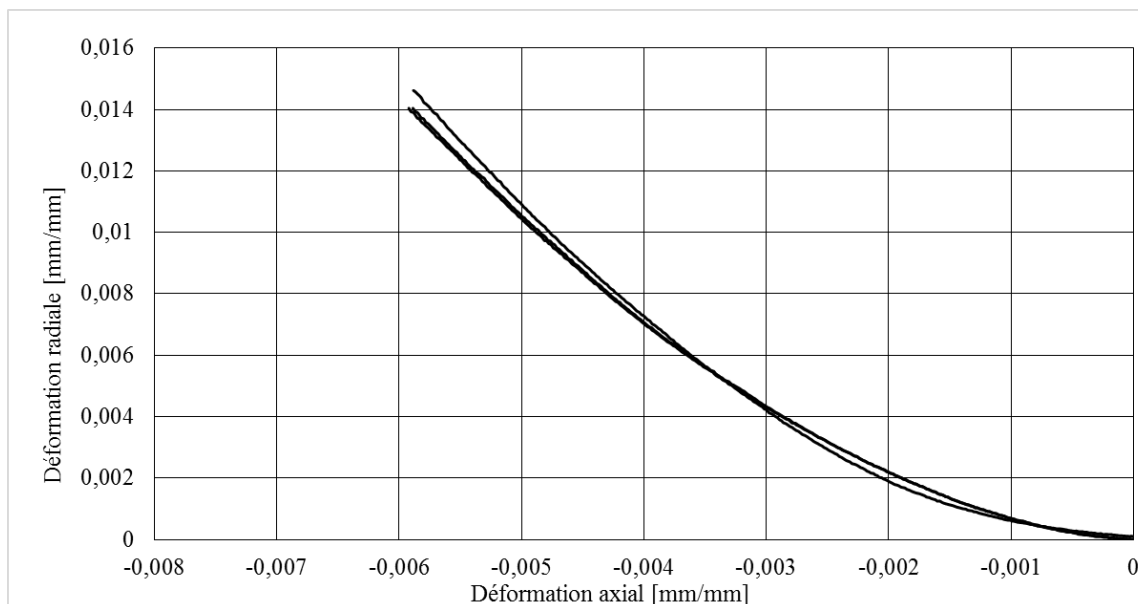


Figure A.14 : Courbes déformation radiale vs déformation axiale tracées à partir des essais de compression uniaxiale à 230°C sur des échantillons d'anode de carbone crus.

#### **D - Essais de compression uniaxiale à 250°C sur des échantillons d'anode de carbone cuits à 300°C**

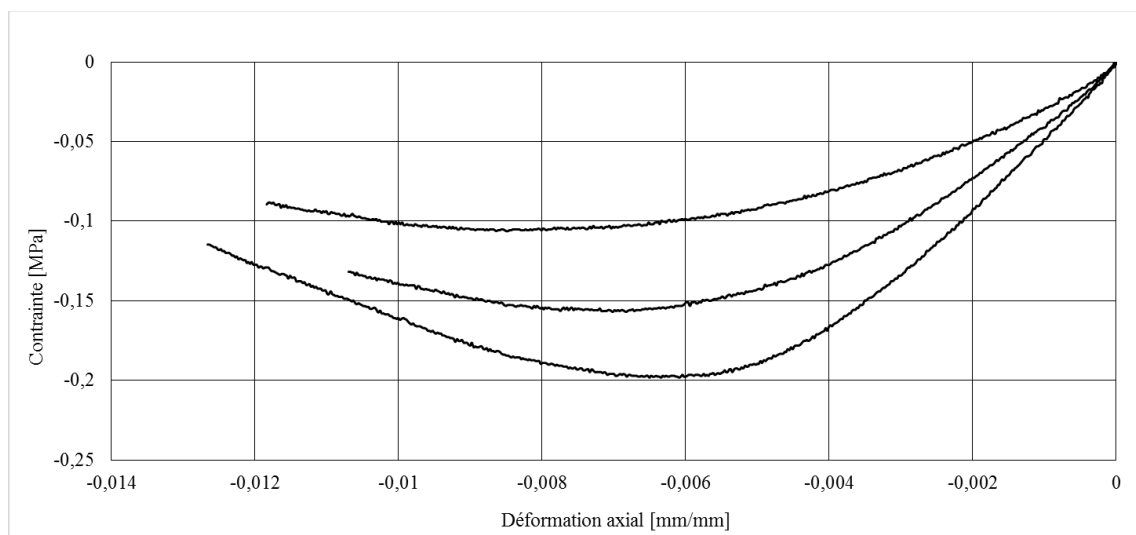


Figure A.15 : Courbes contrainte vs déformation axiale tracées à partir des essais de compression uniaxiale à 250°C sur des échantillons d'anode de carbone cuits à 300°C.

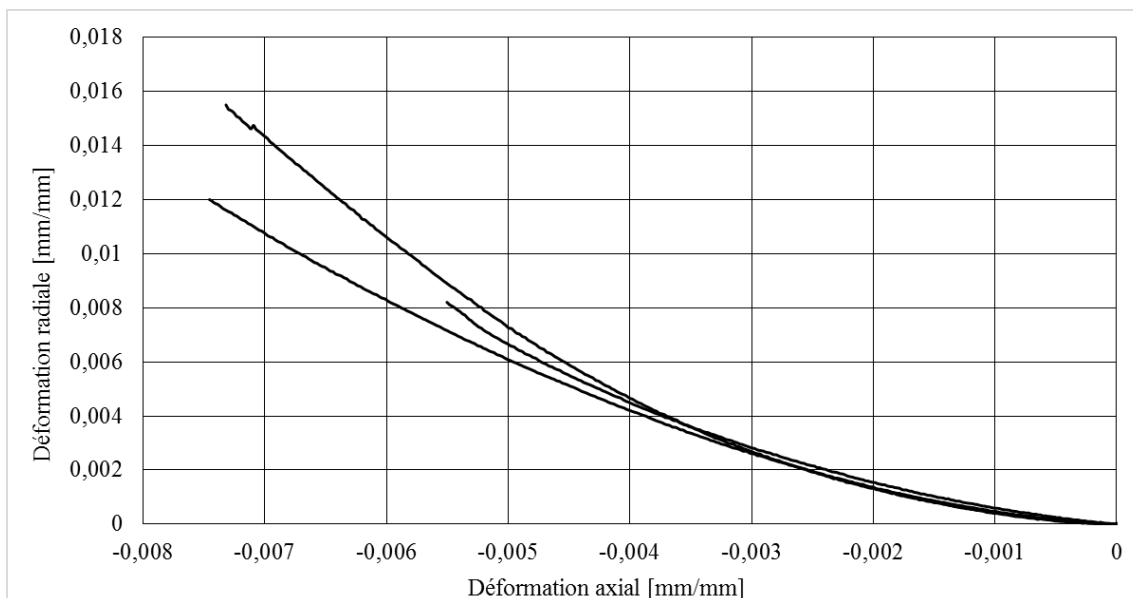


Figure A.16 : Courbes déformation radiale vs déformation axiale tracées à partir des essais de compression uniaxiale à 250°C sur des échantillons d'anode de carbone cuits à 300°C.

#### **E - Essais de compression uniaxiale à 250°C sur des échantillons d'anode de carbone cuits à 400°C**

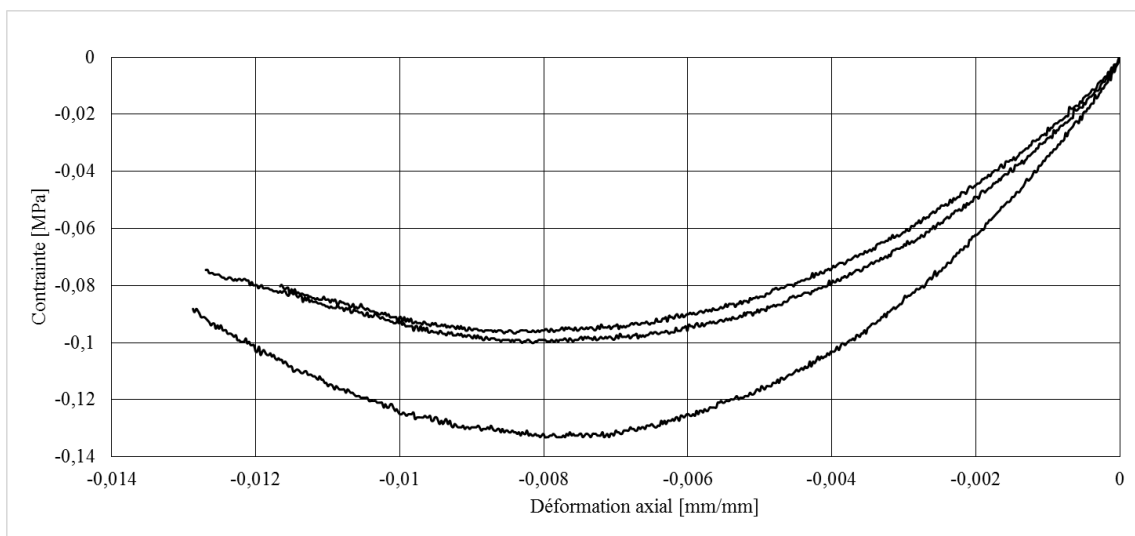


Figure A.17 : Courbes contrainte vs déformation axiale tracées à partir des essais de compression uniaxiale à 250°C sur des échantillons d'anode de carbone cuits jusqu'à 400°C.

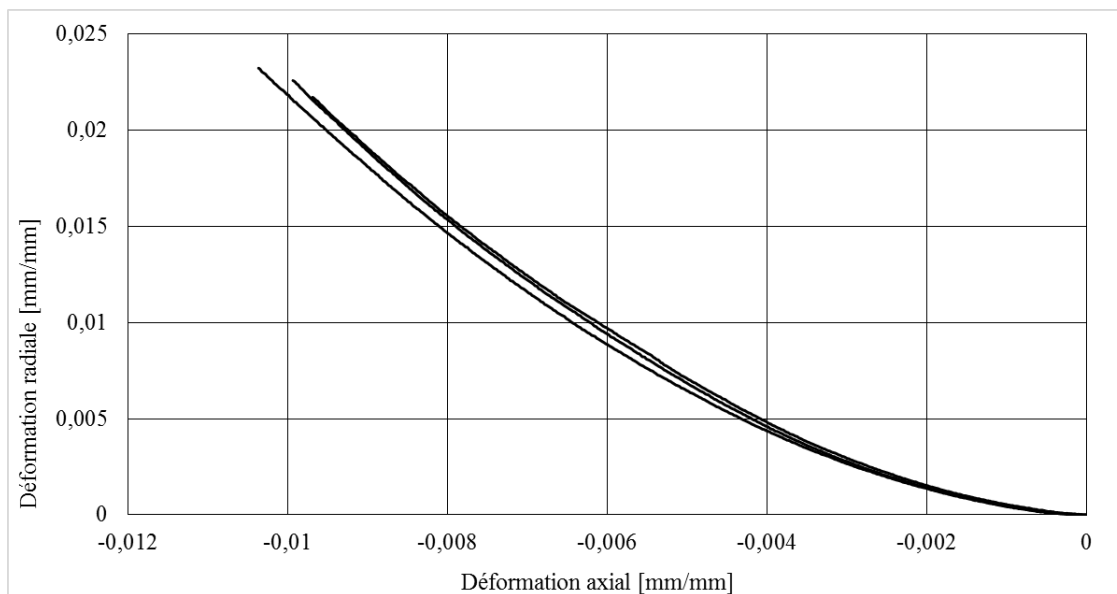


Figure A.18 : Courbes déformation radiale vs axiale déformation radiale tracées à partir des essais de compression uniaxiale à 250°C sur des échantillons d'anode de carbone cuits à 400°C.

**F – Paramètres de l'enveloppe de rupture identifiés à partir des tests de compression triaxiale**

T de cuisson [°C]	$S_{uc}^{TA}$ [MPa]	$S_{uc}^c$ [MPa]	$\beta$	$\sigma_3^{TA}$ [MPa]						$\sigma_1^{TA}$ [MPa]			$\sigma_3^C$ [MPa]			$\sigma_1^C$ [MPa]			$\tau_0$ [MPa]	$S_{uc}$ [MPa]	$S_{ut}$ [MPa]
				0,2 $S_{uc}$	0,4 $S_{uc}$	0,6 $S_{uc}$	0,2 $S_{uc}$	0,4 $S_{uc}$	0,6 $S_{uc}$	0,2 $S_{uc}$	0,4 $S_{uc}$	0,6 $S_{uc}$	0,2 $S_{uc}$	0,4 $S_{uc}$	0,6 $S_{uc}$	0,2 $S_{uc}$	0,4 $S_{uc}$	0,6 $S_{uc}$			
25	46,197	46,197	1	10	20	30	56,36	71,71	84,41	-10	-20	-30	-56,36	-71,71	-84,41	-71,71	-84,41	-84,41	14,18	-33,64	23,91
120	46,197	0,514	0,011	10	20	30	56,36	71,71	84,41	-0,111	-0,223	-0,334	-0,627	-0,798	-0,94	-0,627	-0,798	-0,94	0,158	-0,374	0,266
180	46,197	0,17	0,004	10	20	30	56,36	71,71	84,41	-0,037	-0,074	-0,111	-0,208	-0,264	-0,311	-0,208	-0,264	-0,311	0,052	-0,124	0,088
230	46,197	0,113	0,002	10	20	30	56,36	71,71	84,41	-0,024	-0,049	-0,073	-0,138	-0,175	-0,206	-0,138	-0,175	-0,206	0,035	-0,082	0,058
300	41,271	0,154	0,004	10	20	30	56,36	71,71	84,41	-0,037	-0,075	-0,112	-0,21	-0,267	-0,314	-0,21	-0,267	-0,314	0,053	-0,125	0,089
400	47,463	0,11	0,002	10	20	30	56,36	71,71	84,41	-0,023	-0,046	-0,07	-0,131	-0,166	-0,196	-0,131	-0,166	-0,196	0,033	-0,078	0,055
500	35,675	29,845	0,837	10	20	30	56,36	71,71	84,41	-8,366	-16,73	-25,1	-47,15	-59,99	-70,62	-47,15	-59,99	-70,62	11,86	-28,14	20,01
600	53,019	56,039	1,057	10	20	30	56,36	71,71	84,41	-10,57	-21,14	-31,71	-59,57	-75,8	-89,22	-59,57	-75,8	-89,22	14,99	-35,55	25,28
1200	55,224	62,871	1,138	10	20	30	56,36	71,71	84,41	-11,39	-22,77	-34,15	-64,17	-81,64	-96,1	-64,17	-81,64	-96,1	16,15	-38,3	27,23

